

Willi Stahlhofen

DER NATÜRLICHE GEHALT
DES MENSCHLICHEN KÖRPERS
AN ALPHASTRAHLENDEN NUKLIDEN

Frankfurt am Main 1964

Aus dem Max-Planck-Institut für Biophysik in Frankfurt a.M.
Direktor: Prof. Dr. Dr.h.c. Dr.h.c. Dr.h.c. Dr.h.c. B. Rajewsky

Der natürliche Gehalt des menschlichen Körpers
an alphastrahlenden Nukliden

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaftlichen Fakultät der
JOHANN-WOLFGANG-GOETHE-UNIVERSITÄT
zu Frankfurt am Main

vorgelegt von
WILLI STAHLHOFEN
aus Obereschbach

1964

Gedruckt mit Genehmigung der Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Johann Wolfgang Goethe-Universität in
Frankfurt am Main



1. Referent: Prof. Dr. B. RAJEWSKY
 2. Referent: Prof. Dr. E. SCHOPPER
- Tag der mündlichen Prüfung: 22. Juli 1964

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1 <u>Einleitung</u>	1 - 4
2 <u>Der natürliche ^{226}Ra-Gehalt des menschlichen Körpers</u>	5 - 27
2.1 Der gesamte ^{226}Ra -Gehalt des menschlichen Körpers	5
2.2 Der ^{226}Ra -Gehalt menschlicher und tierischer Knochenproben	8
2.3 Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Organproben	12
2.4 Altersabhängigkeit des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes beim Menschen	17
2.5 Altersabhängigkeit des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes beim menschlichen Fötus	18
2.6 Natürlicher Radiumgehalt der menschlichen Plazenta und plazentarer Übergang des Radiums in das fötale Gewebe	25
3 <u>Der natürliche ^{210}Pb- und ^{210}Po-Gehalt im Körper des Menschen</u>	28 - 38
3.1 Der ^{210}Pb -Gehalt des menschlichen Knochens	29
3.2 Der ^{210}Po -Gehalt des menschlichen Knochens	33
3.3 Verteilung des ^{210}Po -Gehaltes im menschlichen Körper	36
4 <u>Messungen von α-strahlenden Nukliden mit Zinksulfid-Schirmen</u>	39 - 46
4.1 Berechnung der Zählgeometrie zur Bestimmung der insgesamt emittierten α -Teilchen	39
4.2 Überlegungen zur Ermittlung der ^{228}Th -Aktivität	41

	<u>Seite</u>
4.3 Theoretische Bestimmung der ^{228}Th -Aktivität	42
5 <u>Mischmethode zur Messung der α-Aktivität</u>	47 - 85
5.1 Beschreibung der Meßanordnung	47
5.2 Chemische Präparation der für die Mischmethode verwendeten Knochenaschen	49
5.3 Messung des Remissionsgrades der chemisch vorbehandelten Aschen	50
5.4 Bestimmung der Zählausbeute bei der Vermischung des Knochenaschenpulvers mit den radioaktiven Substanzen	52
5.5 Zur Klärung des Zählratenanstieges bei Messungen von ^{210}Po -Aktivitäten mit der Mischmethode	55
5.6 Berücksichtigung der Eigenaktivität des ZnS(Ag)	61
5.7 Bestimmung der Zählausbeute bei chemischem Einbau der radioaktiven Nuklide in die Knochenasche	63
5.7.1 Zählrate und Zählausbeute in Abhängigkeit von der Korngröße des Szintillators ZnS(Ag) und der Knochenasche	64
5.7.2 Zählausbeute als Funktion des Mischungsverhältnisses von Knochenasche und ZnS(Ag)	66
5.7.3 Sättigungsschichtdicken für ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po	72
5.7.4 Überprüfung des linearen Zusammenhangs von Zählrate und Zerfallsrate	73
5.7.5 Einfluß des Absorptionskoeffizienten der Mischung für das Lumineszenzlicht des ZnS(Ag)	73
5.7.6 Vergleich der Nachweisempfindlichkeit von Zinksulfid-Schirmmethode und Mischmethode	85

	<u>Seite</u>
6 <u>Messungen des ^{228}Th- und ^{226}Ra-Gehaltes im menschlichen Knochen</u>	86 - 93
6.1 Fehlerbetrachtung	89
6.2 Bestimmung des Verhältnisses von ^{228}Th zu ^{226}Ra und Diskussion der Meßergebnisse	90
7 <u>Bestimmung des ^{228}Th- und ^{232}Th-Gehaltes in Gewebeproben von Thorotrastpatienten</u>	94 - 96
8 <u>Über die Verteilung von radioaktiven Nukliden im Knochen</u>	97 - 104
8.1 Vorstellung über das Zustandekommen einer Gleichverteilung bei Dauerzufuhr von kleinsten Mengen radioaktiver Nuklide	97
8.2 Die Verteilung natürlich α -strahlender Nuklide im Knochen für normal vorhandene Radioaktivitätskonzentrationen	99
9 <u>Die natürliche Strahlenbelastung des Menschen</u>	105 - 124
9.1 Bestimmung der Dosisleistung der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide im Gewebe des Menschen	105
9.1.1 Dosisleistung der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide im menschlichen Knochen	105
9.1.2 Dosisleistung der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide im menschlichen Weichgewebe	110
9.2 Bestimmung der Dosisleistung der β - und γ -Strahlung natürlich radioaktiver Nuklide im Gewebe des Menschen	112
9.3 Die gesamte natürliche Dosisbelastung des Menschen im Vergleich zur Belastung durch ^{90}Sr und ^{137}Cs	119
10 <u>Zusammenfassung</u>	125 - 128
<u>Tabellen - Anhang</u>	129 - 138
<u>Literaturverzeichnis</u>	139 - 147

1 Einleitung

Neben der immer häufigeren Benutzung künstlich radioaktiver Nuklide hat auch das Arbeiten mit natürlich radioaktiven Substanzen der Uran- und Thoriumreihe in Industrie, Medizin und Forschung in den letzten Jahren eine erhebliche Ausweitung erfahren. Unfälle, bei denen derartige Stoffe inkorporiert wurden, zeigten, daß schon relativ kleine Mengen erkennbare Schäden im Innern des Körpers verursachen können. Vergiftungsfälle in der radiumverarbeitenden Industrie Amerikas und Deutschlands führten bereits vor über 30 Jahren zu Untersuchungen über die Verteilung inkorporierten Radiums im Körper und zu dessen schädigenden Wirkungen (1) (2) (3) (4) (5). In einer im Jahre 1933 erschienenen Arbeit von EVANS, die das gesamte bis dahin von Radiumvergiftungsfällen bekannte Tatsachenmaterial diskutierte, wird zum erstenmal eine toxisch wirksame Grenzmenge für das im Körper zurückbleibende Radium angegeben (2). Sie lag zwischen 2 und 10 μg Radium. FLINN kam dann im Jahre 1934 aufgrund seiner Untersuchungen zu der Auffassung, daß bereits 1 μg Radium im Körper zu schwersten Schädigungen führen kann (3) (6) (7).

Unmittelbar danach wurden von RAJEWSKY und seinen Mitarbeitern die ersten physikalischen Messungen an Vergiftungsfallen aus der radiumverarbeitenden Industrie in Deutschland durchgeführt. Als Hauptablagerungsstätte für Radium ("kritisches Organ") wurde das Knochengewebe erkannt (4). Im Weichgewebe wurde demgegenüber ein weitaus geringerer Radiumgehalt gefunden, wobei die Radium-Aktivität im Muskelgewebe am geringsten ist. RAJEWSKY und Mitarbeiter stellten weiterhin fest, daß in den ersten Tagen nach der Inkorporation die Radiumausscheidung sehr hoch ist und dann im Laufe der Zeit immer geringer wird, bis sich endlich ein Grenzwert für die im Körper verbleibende Radiummenge einstellt. Der Ausscheidungskoeffizient für diese Menge, sie wird von RAJEWSKY als "Restradium" bezeichnet, ist sehr klein. Mit einer Verminderung der toxischen Wirkung ist in diesem Zustand nicht mehr zu rechnen. RAJEWSKY stellte fest, daß einer oralen Gabe von 100 μg Radium eine Restradiummenge von 1 μg entspricht (4).

In Fortsetzung dieser Untersuchungen konnte RAJEWSKY im Jahre 1936 zeigen, daß bereits Radiummengen von 1 μg und weniger

toxische Wirkungen hervorrufen (4) (8). Dieses Ergebnis wurde durch spätere Arbeiten von AUB (9), KARTLAND (10) und EVANS (11) bestätigt. EVANS stellte weiterhin 1943 fest, daß bei Patienten, deren gesamter Radiumgehalt kleiner war als $0,5 \mu\text{g}$, keine Schädler zu beobachten waren (11). In dieses Resultat geht natürlich die individuelle Disposition der Versuchspersonen ein. So ergaben 15 Jahre später von HINDLARSCH und VAUGHAN durchgeführte Messungen an einem an Leukämie gestorbenen Patienten 6 Monate nach dessen Tod eine Radiumablagerung von nur $0,3 \mu\text{g}$ im Skelett (12). Dieses Beispiel soll die Problematik aller Zahlenangaben zu diesem Problem aufzeigen.

Aufgrund derartiger Befunde und spezieller Kontrolluntersuchungen an Hunderten von Arbeitnehmern aus der radiumverarbeitenden Industrie wurde als höchst zulässiger Wert für die Restradiummenge im Körper des Menschen $0,1 \mu\text{g}$ Radium festgelegt. Die Internationale Kommission für Strahlenschutz (ICRP) schloß sich dieser Festlegung an. Die maximal zulässige Menge von $0,1 \mu\text{g}$ Radium stellt den noch heute international verbindlichen Wert dar (13) (14). Zur Zeit der obigen Untersuchungen war das Wissen über die natürliche Radioaktivität des menschlichen Körpers noch recht unzulänglich. Als Bezugswert kommt aber der Höhe der natürlichen Körperradioaktivität bei Aussagen über die höchst zulässige Menge an Radium eine sehr große Bedeutung zu. Zudem werden die höchst zulässigen Mengen für alle α -strahlenden Substanzen, die sich im Knochen ablagern, durch Vergleich mit der maximal zulässigen Menge von Radium berechnet (13) (14).

Die ersten Messungen über den natürlichen Radiumgehalt im menschlichen Gewebe wurden auf Anregung von RAJEWSKY in den Jahren 1938 und 1942 von KREBS durchgeführt (15) (16). Weitere Arbeiten von RAJEWSKY und Mitarbeitern über den natürlichen Radiumgehalt der Nahrung, des Trinkwassers und verschiedener menschlicher bzw. tierischer Organproben folgten (17) (18) (19) (20) (21) (22). Daneben beschäftigten sich noch Untersuchungen von TURNER (23), HURSH (24), STEHNEY und LUCAS (25), BURKNER und Mitarbeiter (26), ENGELMANN (27), LUCAS (28), PALMER und QUEEN (29), WALTON, KOLOGRIMOV und KULP (30) sowie von MAYNEORD und Mitarbeitern (31) (32) und MICHALISON (33) mit der Messung der Radium-Aktivität

des menschlichen Körpers und der Ermittlung des Radiumgehaltes von Nahrungsmitteln und Trinkwasser.

Die Beurteilung der Strahlenbelastung des Menschen durch das natürliche "Strahlenmilieu" setzt die Kenntnis der im menschlichen Körper vorhandenen natürlich radioaktiven Nuklide voraus. Als Quelle für eine "Teilkörperbestrahlung von innen" kamen seither im menschlichen Körper bzw. seinen Organen unter natürlichen Bedingungen die folgenden Nuklide in Betracht : ^{226}Ra im Knochen, Radon als Folgeprodukt des ^{226}Ra in der Lunge, ^{14}C im Fettgewebe und ^{40}K in der Muskulatur (34) (35). Als Folge der Atombombenexplosionen kamen im wesentlichen langlebige Spaltprodukte hinzu : ^{90}Sr im Knochen, ^{137}Cs in der Muskulatur.

Die im menschlichen Körper inkorporierten natürlich radioaktiven Nuklide stellen zusammen mit der gesamten äußeren Strahlenbelastung (von der Höhenstrahlung und der Umgebungsstrahlung) die "natürliche Strahlenbelastung" dar, von der als Grundlage alle Abschätzungen über gefährliche Konzentrationen strahlender Nuklide ausgehen müssen. Bildet doch z.B. die Höhe der natürlichen Strahlenbelastung des Skelettes die Grundlage zur Beurteilung der Frage, ob ein eventuell erhöhtes Auftreten von Knochentumoren oder Leukämie auf Strahleneinwirkung zurückzuführen ist.

Ein Vergleich der zusätzlichen Strahlenbelastung des menschlichen Körpers durch inkorporierte Spaltprodukte, wie ^{90}Sr und ^{137}Cs , mit der von natürlich radioaktiven Nukliden herrührenden Belastung von innen führte bisher aus Mangel an verlässlichen Werten über den natürlich radioaktiven Gehalt zu einer Überschätzung der von den künstlich radioaktiven Spaltprodukten verursachten Strahlenbelastung.

In den letzten Jahren wurden neue, bisher im Körper noch nicht beobachtete, natürlich radioaktive Substanzen gefunden (37)(38). Untersuchungen von MAYNEORD, RADLEY und TURNER über die gesamte Alphastrahlen-Aktivität des Menschen führten erstmals zum Nachweis des radioaktiven Nuklids ^{228}Th und seiner Folgeprodukte im menschlichen Körper.

In der vorliegenden Arbeit wurde außerdem noch ein ^{210}Pb - und ^{210}Po -Anteil in menschlichen Knochen und Organen gefunden. Messungen von HILL (39), BLACK (40) und HOLTZMAN (41), die vor kurzem veröffentlicht wurden, bestätigten dieses Resultat. Die Untersuchungen dieser Arbeit sollten einmal Aufschluß darüber geben, welche alphastrahlenden natürlich radioaktiven Nuklide im menschlichen Körper insgesamt vorhanden sind, und zum anderen Angaben über die Belastung durch diese einzelnen Komponenten erbringen. Der Mechanismus der Anreicherung der natürlich radioaktiven Nuklide und ihre Verteilung werden studiert.

Eine Dosisabschätzung zeigt zusätzliche Komponenten der Strahleneinwirkung, die bisher bei der Berechnung von Strahlenbelastungen durch die Atombombenspaltprodukte vernachlässigt wurden. Aufgrund der angegebenen Werte ist nun eine kritische Beurteilung der Bedeutung der durch künstlich radioaktive Spaltprodukte hervorgerufenen zusätzlichen Belastung möglich.

2 Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt des menschlichen Körpers

2. 1 Der gesamte ^{226}Ra -Gehalt des menschlichen Körpers

In den Jahren 1939 und 1942 ist von KREBS sowohl mit einer Spitzenzählrohranordnung die gesamte Alphastrehlenaktivität von veraschten menschlichen Gewebeproben als auch gemeinsam mit JANITZKY der Radiumgehalt des menschlichen Körpers mittels der Emanationsmethode bestimmt worden (15) (16). Dabei ergaben sich für den ^{226}Ra -Gehalt des Gesamtkörpers Mengen zwischen $1 \cdot 10^{-9}$ und $4 \cdot 10^{-8}$ g Radium. Da viele der von KREBS ermittelten Werte nur um den Faktor drei kleiner sind als die für Radium angegebene maximal zulässige Menge, die Spanne zwischen natürlichem ^{226}Ra -Gehalt und der maximal zulässigen Menge sich danach also als sehr gering ergibt, wurden in der Folgezeit Überprüfungen dieser Untersuchungen mit genaueren Meßmethoden notwendig.

Im Jahre 1950 haben HURSH und GATES mit Hilfe der Emanationsmethode Messungen des ^{226}Ra -Gehaltes an Proben von menschlichen Gesamtkörperaschen vorgenommen (24) (42). Die einzelnen Individuen wurden hierzu auf Stanlunterlagen verascht. Der Mittelwert dieser an 20 verschiedenen menschlichen Aschenproben durchgeführten Messungen betrug $1,2 \cdot 10^{-10}$ g Radium pro Gesamtkörper. Dieser Wert liegt also etwa zwei Zehnerpotenzen niedriger als die höchsten Werte von KREBS (15) (16). MARTIN und FERGUSON schätzten hingegen 1952 über den Radongehalt der Ausatemungsluft unter Annahme einer Radon-Retention im Körper von 50 % einen Wert von $1 \cdot 10^{-9}$ g Radium pro Gesamtkörper ab (43). Von STEINNEY und LUCAS an 46 lebenden Personen durchgeführte Messungen ergaben ^{226}Ra -Werte zwischen 0,4 und $3,7 \cdot 10^{-10}$ c (25).

Um diese Diskrepanz zu klären, wurden von RAJEWSKY, MUTH und Mitarbeitern erneut Messungen an Krematoriumsaschen aufgenommen (17) (18) (19) (22) (44). Diese erfolgten ebenso wie bei KREBS nach der Emanationsmethode, wobei allerdings anstelle des Spitzenzählers bzw. einer einzigen Ionisationskammer eine Elektrometeranordnung mit zwei Ionisationskammern in Kompensationsschaltung benutzt wurde (44). Dadurch konnte die Umgebungs- und Höhenstrahlung ohne jede weitere Abschirmung so gut auskompensiert werden, daß noch Radon-Mengen bis zu $1,2 \cdot 10^{-13}$ c nachweisbar waren. Der Meßfehler beträgt für eine Aktivität von $3 \cdot 10^{-13}$ c ± 30 % (21).

Bei dieser Methode wird die veraschte Substanz in Salzsäure und Salpetersäure gelöst und sodann in Curiekölbchen eingeschmolzen. Nachdem sich zwischen dem in der Lösung befindlichen Radium und seinem Folgeprodukt Radon das radioaktive Gleichgewicht eingestellt hat, überführt man mit Hilfe von gealtertem Stickstoff das Radongas in eine der beiden Ionisationskammern und mißt den Ionisationsstrom. Die Apparatur wird mit Hilfe von ^{226}Ra -Standards vom NATIONAL BUREAU OF STANDARDS geeicht.

Der Mittelwert, der sich aus den von MUTH und Mitarbeitern nach der obigen Methode durchgeführten Messungen an 15 Krematoriumsaschen ergibt, beträgt $3,3 \cdot 10^{-10}\text{c}$ und stimmt gut mit dem Mittelwert der Messungen an Krematoriumsaschen von HURSH und GATES überein. Diese erhielten ebenfalls einen Wert von $3,2 \cdot 10^{-10}\text{c}$ ^{226}Ra pro Gesamtkörper (24).

Auffallend ist, daß nur die ^{226}Ra -Werte von HURSH und GATES, die an Krematoriumsaschen gewonnen wurden, gut mit den Messungen von MUTH und Mitarbeitern übereinstimmen. Die Messungen der auf Stahlunterlagen veraschten Individuen ergaben hingegen niedrigere Radiummengen, deren Mittelwert bei $1,2 \cdot 10^{-10}\text{c}$ lag. HURSH und GATES stellten bei ihren Untersuchungen fest, daß die Krematoriumsaschen Anteile des Krematoriumbodens enthielten, dessen Radium-Aktivität mit $5 \cdot 10^{-12}\text{c}$ ^{226}Ra pro Gramm recht hoch ist (24). Eigene Untersuchungen an Steinstaubproben ergaben einen ^{226}Ra -Gehalt in der gleichen Größenordnung.

In der vorliegenden Arbeit wurden nun die Messungen an den Krematoriumsaschen mittels der Emanationsmethode wiederholt und dabei sorgfältig darauf geachtet, daß keinerlei Verunreinigungen in den Aschenproben auftraten. Als Ergebnis dieser Untersuchungen sind in der Tabelle 1 die gemessenen Werte des ^{226}Ra -Gehaltes von 20 Krematoriumsaschen zusammengestellt. Der Mittelwert für den ^{226}Ra -Gehalt des gesamten Körpers liegt danach bei $0,47 \cdot 10^{-10}\text{c}$. Eine Abhängigkeit des ^{226}Ra -Gehaltes von Alter, Geschlecht oder Krankheit konnte nicht beobachtet werden. Dieses Ergebnis stimmt gut überein mit den Messungen von PALMER und QUEEN, die einen Wert für den gesamten ^{226}Ra -Gehalt des menschlichen Körpers von $0,5 \cdot 10^{-10}\text{c}$ erhielten (29).

WALTON und Mitarbeiter haben an menschlichen Skelettaschen im

Mittel einen ^{226}Ra -Wert von $0,36 \cdot 10^{-10}\text{c}$ gemessen, und LUCAS fand hier einen Radiumgehalt von $0,32 \cdot 10^{-10}\text{c}$ (28) (30).

Todesursache	Gesamtkörper- Asche (g)	Alter (a)	$^{226}\text{Ra/g}$ Asche (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra/Gesamt-}$ körper (10^{-11}c)
Gehirnerschütterung	3385	21	2,0	6,8
Lebercirrhose	2850	56	1,6	4,6
Herzinfarkt	2650	62	2,2	5,8
Herzstillstand	2725	59	2,7	7,4
Amyotrophische Lateralsklerose	2850	56	2,2	6,3
Lungenembolie	2840	55	1,0	2,8
Collumkarzinom	2780	45	1,2	3,3
CO - Vergiftung	2985	23	2,0	6,0
Vergiftung B 605	2865	58	1,9	5,4
Herzinfarkt	2420	58	0,6	1,5
Herzinfarkt	3015	57	0,5	1,5
Pankreaskopfkarzinom	2790	68	1,9	5,3
Pneumonie	2600	58	1,9	4,9
Unterleibskarzinom	2740	34	1,2	3,3
CO - Vergiftung	2800	61	0,9	2,5
Brustdrüseneschwulst	3000	53	1,6	4,8
Kreislaufversagen	3120	34	1,6	5,0
Myodegeneratio Cordis	2860	48	1,5	4,3
Uramie	2970	47	3,3	10,0
Bronchialsklerose	2965	78	0,5	1,5
Gesamtmittelwerte:			1,6	5,0

Tabelle 1 Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt von Krematoriumsaschen

Ein Vergleich der ^{226}Ra -Messungen an Skelettaschen von LUCAS sowie von WALTON und Mitarbeitern mit den eigenen Messungen erlaubt den Schluß, daß sich praktisch der größte Teil des ^{226}Ra -Gehaltes des menschlichen Körpers im Skelett befindet.

2. 2 Der ^{226}Ra -Gehalt menschlicher und tierischer Knochenproben

Parallel zu den Messungen des Gesamt-Radiumgehaltes des menschlichen Körpers wurde von RAJEWSKY und Mitarbeitern auch die Verteilung des Radiums auf die einzelnen Organe untersucht (21)(22). Die ^{226}Ra -Messungen an menschlichen Knochen ergaben eine ^{226}Ra -Aktivität von $1,2 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche für Tibia- und von $1,1 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche für Femur-Proben (22). Unter Berücksichtigung der verschiedenen Einengungsfaktoren der einzelnen Knochenzonen errechnen sich daraus Werte zwischen $3 \cdot 10^{-15}$ und $5 \cdot 10^{-15}$ c pro Gramm Knochen-Frischgewicht.

Eigene Messungen der ^{226}Ra -Aktivität menschlicher Knochenproben bestätigten dieses Ergebnis (Tabellen I, II im Anhang). Es wurden insgesamt 69 Knochenstücke gemessen, 33 aus dem Raum Frankfurt (Tabelle I, Anhang), 36 aus dem Gerichtsmedizinischen Institut der Universität Kiel (Tabelle II, Anhang). Der Mittelwert der Frankfurter Proben liegt bei $1,3 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche bzw. $4,5 \cdot 10^{-15}$ c/g Frischgewicht. Die 36 Tibia-Proben aus Kiel ergaben einen Mittelwert von $1 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche und $2,1 \cdot 10^{-15}$ c/g Frischgewicht. Die unterschiedliche spezifische Aktivität pro Gramm Frischgewicht der Tibienproben aus Kiel und Frankfurt ist darauf zurückzuführen, daß die Kieler Proben aus Knochengelenkstücken bestanden, die wegen ihres größeren Knorpelanteils einen höheren Einengungsfaktor als der Knochenschaft haben, während die Frankfurter Proben sich zu gleichen Teilen aus Schaft, Wachstumszone und Knochenkappen zusammensetzten. Aus den Tabellen I und II (Anhang) ersieht man, daß die Schwankung des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes pro Gramm Asche bei verschiedenen Individuen nicht sehr groß ist. Die ^{226}Ra -werte variieren zwischen $0,3 \cdot 10^{-14}$ und $3 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche. In der Abb. 1 ist die Häufigkeitsverteilung des ^{226}Ra -Gehaltes der Kieler und Frankfurter Knochenproben dargestellt. Wie man aus der Abbildung 1 ersieht, erhält man keine symmetrische Verteilung. Der im Mittel häufigst auftretende ^{226}Ra -wert liegt bei $1 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche. Der arithmetische Mittelwert beträgt $1,2 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche.

mit einer mittleren Schwankungsbreite von $\pm 0,6$.

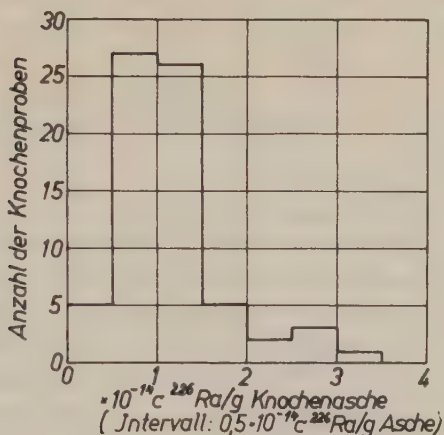


Abb. 1 Häufigkeitsverteilung von ^{226}Ra im menschlichen Knochen

Die Messungen des ^{226}Ra -Gehaltes verschiedener Knochenarten ergab keine signifikante Bevorzugung einer bestimmten Knochenart. Für Femur, Tibia, Wirbelsäule, Rippen und Sternum wurden innerhalb der festgestellten natürlichen Schwankungsbreiten dieselben Werte gefunden. Dies stimmt überein mit den Befunden von RAJEWSKY und HANTKE, die ebenso wie WALTON und Mitarbeiter feststellten, daß innerhalb des menschlichen Körpers keine Knochenart bevorzugt ^{226}Ra einbaut (30).

In der vorliegenden Arbeit wurde zusätzlich die Variation des ^{226}Ra -Gehaltes innerhalb eines einzigen Knochens untersucht. Zur Erzielung eines möglichst hohen Genauigkeitsgrades diente als Material für die Messungen der Femurknochen des Rindes, dessen spezifische ^{226}Ra -Aktivität zwischen 1 und $5 \cdot 10^{-13} \text{ c/g Asche}$ liegt. Im Mittel haben die Proben eine Aktivität von $0,5 \cdot 10^{-11} \text{ c}$, die mit einem Gesamtfehler von etwa $\pm 14 \%$ gemessen werden kann (21). Von jedem einzelnen Knochen wurden jeweils Proben aus der

Knochenkappe, der Wachstumszone und dem Mittelstück entnommen und deren ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Asche bestimmt. Zur Untersuchung einer eventuellen Altersabhängigkeit der ^{226}Ra -Verteilung studierten wir Knochen von 10 Wochen, 9 Monate, 12 Monate und 7 Jahre alten Rindern (Tabelle 2). Aus Tabelle 2 ist zu entnehmen, daß sowohl bei dem 7 Jahre alten als auch bei dem 1 Jahr, 9 Monate und 10 Wochen alten Knochen innerhalb der Fehlerbreite eine Gleichverteilung des ^{226}Ra -Gehaltes entlang des gesamten Knochens vorliegt.

In der Tabelle 3 ist der ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Asche verschiedener Tierknochen im Vergleich zur ^{226}Ra -Aktivität des menschlichen Knochens aufgetragen. Die einzelnen Meßpunkte sind jeweils Mittelwerte aus mehreren Messungen verschiedener Knochen derselben Tierart. Wie man aus diesen Zahlen ersieht, unterscheidet sich die natürliche ^{226}Ra -Aktivität der einzelnen Tierarten ganz erheblich voneinander. Es ist nicht bekannt, ob es sich hierbei um Unterschiede handelt, die durch verschiedene Arteigenschaften der Tiere bedingt sind, oder ob die voneinander abweichenden Werte nur eine Folge der verschiedenen Ernährungsweise der Tiere darstellen.

Alter des Rindes	Berechnung der untersuchten Knochenzonen	$^{226}\text{Ra}/\text{g Asche}$ (10^{-12}C/g)
7 Jahre	Kappe rechts	5,0
	Wachstumszone rechts	4,3
	Mittelstück	5,3
	Kappe links	5,5
	Wachstumszone links	4,2
12 Monate	Kappe rechts	2,5
	Wachstumszone rechts	2,5
	Mittelstück	2,4
	Kappe links	2,3
	Wachstumszone links	2,4
9 Monate	Kappe rechts	4,4
	Wachstumszone rechts	4,4
	Mittelstück	4,2
	Kappe links	4,6
	Wachstumszone links	4,4
12 Wochen	Kappe rechts	1,1
	Wachstumszone rechts	1,2
	Mittelstück	0,9
	Kappe links	1,0
	Wachstumszone links	0,9

Tabelle 2

Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt von verschiedenen Zonen des Rinderknochens

Art	$^{226}\text{Ra}/\text{g Asche}$ (10^{-15}c/g) (Mittelwerte)
Rentier	2,2
Reh	5,1
Hahn	0,3
Huhn	1,0
Rehkitz	2,2
Hirsch	4,8
Gemse	13,9
Schwein	0,2
Schaf	3,0
Hase	1,6
Rind	4,0
Mensch	0,1

Tabelle 3 Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt verschiedener
Tierknochen im Vergleich zum ^{226}Ra -Ge-
halt des Menschenknochens (Mittelwerte)

2. 3 Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Organproben

Die erste Messung des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes von menschlichen Organen wurde von MUTH und Mitarbeitern durchgeführt (21)(22). Der von diesen Autoren gemessene ^{226}Ra -Gehalt der Muskulatur betrug $2,5 \cdot 10^{-15}\text{c/g}$ Frischgewicht. Für Milz, Lunge, Leber wurde ein Radiumwert von etwa $2 \cdot 10^{-15}\text{c/g}$ und für Niere und Pankreas von $1 \cdot 10^{-15}\text{c/g}$ Frischgewicht ermittelt. Bei der Betrachtung dieser Meßergebnisse fällt die im Vergleich zu dem gesamten Radiumgehalt des Menschen zu hohe Aktivität der einzelnen Organproben auf. Es liegt der Schluß nahe, daß die Aktivität der Organproben zu hoch gemessen wurde, da die Knochenmessungen durch die gute Übereinstimmung mit den Werten von LUGAS, MURSH und WALTON gestützt werden (23) (30) (47).

Aus dieser Diskrepanz ergibt sich daher die Notwendigkeit, eine

Überprüfung der Weichgewebismessungen vorzunehmen. Nach den Untersuchungen von KUTH und Mitarbeitern ist der ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Calcium im Weichgewebe 300 bis 600 mal höher als im Knochen (22). Da ^{90}Sr , genau wie Radium, zur Gruppe der Erdalkalien gehört, liegt es nahe, einen derartigen Sachverhalt auch bezüglich des Strontium-Gehaltes von Weichgeweben und Knochen zu fordern. Daher wurden zunächst Untersuchungen über den ^{90}Sr -Gehalt von Weichgewebe durchgeführt. Gut geeignet für solche Untersuchungen ist das Rentier, da in dessen Knochen die ^{90}Sr -Aktivität sehr hoch ist (rund 200 mal höher als im Kinderknochen). Der ^{90}Sr -Gehalt im Rentierknochen wurde deshalb nach einer von GROOS beschriebenen chemischen Methode bestimmt (45).

Bezeichnung	$^{90}\text{Sr/g Asche}$ (10^{-14}c/g)	$^{90}\text{Sr/g Gewebe}$ (10^{-15}c/g)	$^{90}\text{Sr/g Calcium}$ (10^{-12}c/g)
Rehtierfleisch	540	47	1060
Rehtierknochen	8800	18000	210
Hahnfleisch	21	1,8	3,1
Hahnknochen	30	15,0	1,0
Hirschfleisch (Keule)	200	4,4	100
Hirschknochen	1100	2900	29,0
Menschlicher Muskel	2,3	0,2	2,2
Menschlicher Femurknochen	8,7	40,0	0,2

Tabelle 4 ^{90}Sr -Gehalt in tierischen und menschlichen Gewebeproben

Die Messungen ergaben, daß die ^{90}Sr -Aktivität pro Gramm Calcium im Weichgewebe des Rentiers nur etwa 3 bis 5 mal größer ist als

die entsprechende Aktivität im Knochen (46). Der Calciumgehalt der Proben wurde stets durch Titration der Calciumoxalatfällung mit Kaliumpermanganat bestimmt.

^{90}Sr -Bestimmungen an Gewebeteilen von Hirsch und Hahn bestätigten die Messungen an den Rentierproben (Tabelle 4). In menschlichen Organen ergab sich eine etwa 10 mal höhere ^{90}Sr -Aktivität pro Gramm Calcium als im menschlichen Knochen. Man kann daraus ableiten, daß die Strahlenbelastung des Weichgewebes durch ^{90}Sr gegenüber der Strahlenbelastung des Knochens kaum ins Gewicht fällt. Bei keinem der durchgeführten Experimente konnte für ^{90}Sr pro Gramm Calcium ein derartig hohes Verhältnis zwischen Weichgewebeaktivität und Knochenaktivität gefunden werden wie beim ^{226}Ra . Anschließend ^{226}Ra -Messungen gleicher Weichgewebeproben des Rentiers, die in verschiedenen Porzellantiegeln verascht wurden, ergaben Schwankungen des ^{226}Ra -Gehaltes um etwa den Faktor 10, d.h. es ergaben sich für die gleiche Gewebeprobe Radiumwerte zwischen $0,4 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ und $4,5 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Gewebe.

Eine hierauf erfolgende Überprüfung der bisherigen Weichgewebemessungen zeigte, daß das Material der Porzellantiegel, in denen die Proben verascht wurden, eine verhältnismäßig hohe Eigenaktivität an Radium besaß. Offenbar findet während der Veraschung der Organproben im Tiegel zwischen den Alkalien des Weichgewebes und den Silikaten des Porzellans eine Sodaschmelze statt, wodurch das Radium aus dem Tiegel herausgelöst wird.

Zur Überprüfung dieser Hypothese wurde eine Weichgewebephantommischung, deren Radium-Gehalt vorher mit $\sim 3 \cdot 10^{-13} \text{ c}$ gemessen worden war, in einem Porzellantiegel geglüht. Die Phantommischung, die dem Weichgewebe entsprechen soll, setzt sich aus 4 Teilen KNO_3 , 1 Teil Na_2HPO_4 , 0,2 Teilen KHSO_4 und 2 Teilen CaCl_2 zusammen. Dabei zeigte sich, daß die Phantommischung von 60 g nach der Aufbereitung im Ofen eine Radium-Aktivität von $1,4 \cdot 10^{-12} \text{ c}$ aufwies.

Messungen an dem Tiegelmateriale, das durch Flußsäure- und Alkalikarbonataufschluss in Lösung gebracht wurde, ergaben eine Radium-Aktivität von $2 - 3 \cdot 10^{-12} \text{ c}$ pro Gramm Tiegelsubstanz. Auf der Suche nach einem Tiegelmateriale, das für die Veraschung von

Weichgewebe geeignet ist, wurden verschiedene Materialien auf ihren ^{226}Ra -Gehalt getestet. Die Messungen an dem Material "Vitreosil" nach der obigen Methode ergaben eine Tiegelaktivität von $1 \cdot 10^{-13} \text{ c/g}$. Proben von Bergkristall zeigten dagegen eine Aktivität, die kleiner als $1 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Substanz war.

Eine Überprüfung mit Hilfe der später noch zu diskutierenden "Mischmethode" bestätigte diese Ergebnisse (siehe Kapitel 5). Bei der Bestimmung der gesamten α -Aktivität der Bergkristallproben ergaben sich Werte, die kaum vom Nulleffekt zu unterscheiden waren. Aufgrund dieser Befunde wurden die neuen Weichgewebemessungen in Vitreosiltiegeln durchgeführt, die mit Bergkristall ausgekleidet sind. Im Gegensatz zu den Porzellantiegeln zeigten diese Tiegel nach der Veraschung keine Gewichtsabnahme.

Die nun gemessenen Weichgewebeproben hatten eine sehr viel kleinere ^{226}Ra -Aktivität pro Gramm Gewebe. Während der ^{226}Ra -Gehalt des Rentierfleisches (Muskulatur) nach den früheren Messungen Werte bis zu $4,5 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Gewebe erreichte, werden jetzt einheitliche Werte von $3 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Gewebe gefunden. In der Folge wurden auch die Messungen des ^{226}Ra -Gehaltes verschiedener menschlicher Organe wiederholt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5 zusammengestellt. Sie stimmen recht gut mit dem neuerdings von HURSH und Mitarbeitern und LUCAS gefundenen ^{226}Ra -Gehalt der verschiedenen menschlichen Organe überein (28) (47). Jeder Wert in der Tabelle 5 ist ein Mittelwert aus Messungen von 3 verschiedenen Proben. Für eine Probe wurde eine Substanzmenge von etwa 3 kg benötigt. Diese Menge selbst bestand aus Gewebeproben von verschiedenen Menschen. Der Meßeffekt pro Probe beträgt etwa $3 \cdot 10^{-13} \text{ c}$, so daß der Meßfehler $\pm 30 \%$ groß ist (21). Jede einzelne Probe wird jeweils 3 mal gemessen. Der daraus bestimmte Mittelwert ist dann mit einem mittleren Fehler von etwa $\pm 25 \%$ behaftet, da die berechnete Schwankungsbreite für Überföhrungsfehler, Fehler des "Recovery Faktors" und Eichfehler $\pm 15 \%$ beträgt (21). Aus Gründen der Sicherheit wird jedoch für jeden tabellierten ^{226}Ra -Wert, der über eine Radioaktivitätsmessung in Höhe von etwa $3 \cdot 10^{-13} \text{ c}$ ermittelt wurde, ein Fehler von $\pm 30 \%$ angenommen. HURSH gibt für Leber, Milz und Niere einen Mittelwert von etwa $1 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Gewebe, für Muskel von $0,5 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Gewebe an (47) (48). Die beiden von LUCAS gemessenen Werte des

Organ	mg Ca/g Frisch- gew.	mg Ca/g Frischgew. Angabe aus Biochem. Taschenr.	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Frischgew. (10^{-16}g/g)	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Asche (10^{-14}g/g)	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Ca (10^{-12}g/g)
Miere	0,100	0,100 - 0,410	1,0	1,0	5,0
Nieren	0,102		0,9	0,9	4,6
Leber	0,102	0,095	1,0	0,9	9,8
Milch	0,120	0,140	1,0	2,2	8,5
Muskel	0,100	0,034 - 0,102	1,6	1,3	10,0
Knorpel	0,105	0,025 - 0,210	0,5	0,5	4,8
Blutkreis	0,102		0,1	1,2	3,4
Durchschnittswerte:			0,9	1,1	7,6

Tabelle 5 Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt verschiedener menschlicher Organe
(Die Werte in Spalte 3 sind dem "Biochemischen Taschenbuch",
Springer Verlag, Berlin, Göttingen, Heidelberg (1956),
Seite 813 - 815, entnommen.)

^{226}Ra -Gehaltes menschlicher Muskulatur betragen $6,9 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Asche und $9,6 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Asche (28). Mit diesen neu gemessenen Werten des Radium-Gehaltes von Knochen und Weichgeweben war nun auch eine Überprüfung der Krematoriumsaschenwerte möglich. Für einen Knochenwert von $1,2 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Asche bzw. $3,3 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Gewebe errechnet sich der ^{226}Ra -Gehalt des Skeletts zu $0,33 \cdot 10^{-10} \text{ c}$. Als Durchschnittsgewicht des Skeletts wurde dabei der Berechnung ein Wert von 10 kg zugrundegelegt (52). Nimmt man dann für das übrige Weichgewebe ein Gewicht von 60 kg an, dann ergibt sich der ^{226}Ra -Gehalt des Weichgewebes zu $0,06 \cdot 10^{-10} \text{ c}$. Für den Standardmenschen von 70 kg resultiert daraus ein ^{226}Ra -Gehalt von $0,39 \cdot 10^{-10} \text{ c}$ in guter Übereinstimmung mit den Messungen an Krematoriumsaschen, deren Mittelwert $0,47 \cdot 10^{-10} \text{ c}$ betrug. Man sieht weiterhin, daß sich etwa 85 % des gesamten ^{226}Ra -Gehaltes im Skelett befinden und nur etwa 15 % im Weichgewebe. Dieses Ergebnis steht in guter Übereinstimmung mit den letzten Publikationen von HURSH und Mitarbeitern, MAYNEORD und Mitarbeitern sowie von LUCAS (28) (31) (47).

2. 4 Altersabhängigkeit des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes beim Menschen

Um die Frage des Einbaus von ^{226}Ra bei Dauerzufuhr im menschlichen und tierischen Organismus zu klären, waren bereits im Jahre 1958 von RAJEWSKY, MUTH und HANTKE Tierversuche und Untersuchungen an menschlichen Knochen durchgeführt worden (21). Die Altersabhängigkeitsuntersuchungen des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes im Huhnerskelett zeigten, daß der ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Knochenasche in den ersten Lebenstagen abnimmt, etwa vom 100. Tag an stellt sich jedoch ein konstanter Wert ein (21). Für das menschliche Skelett wurde festgestellt, daß der spezifische ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Knochen im Altersbereich zwischen Totgeburt und 80 Jahren keine Altersabhängigkeit zeigt (21). An den in der vorliegenden Arbeit gemessenen Knochenproben konnte dieser Befund bestätigt werden (Tabellen I und II, Anhang). Es ergab sich auch hier keine Korrelation zwischen ^{226}Ra -Aktivität und Alter. Die Streuung der Meßwerte muß wohl auf die verschiedenen Ernährungsweisen der einzelnen Menschen zurückgeführt

werden. In Übereinstimmung hiermit fanden auch MAYNEORD, RADLEY und TURNER bei ihren Messungen des gesamten natürlichen Genaltes des menschlichen Knochens an α -strahlenden Nukliden keine Aktivitätserhöhung mit dem Alter (31) (37). Zusätzlich wurde nun hier die Veränderung des ^{226}Ra -Gehaltes in den einzelnen Entwicklungsstadien des menschlichen Föten verfolgt. Im Rahmen dieser Meßreihe war festzustellen, ob für den spezifischen ^{226}Ra -Gehalt des Fötenknochens in Abhängigkeit vom Alter analoge Gesetzmäßigkeiten gelten wie für das Hühnerskelett. Da man außerdem annehmen kann, daß die Strahlenempfindlichkeit des Föten gerade in den ersten Lebenswochen und Monaten besonders ausgeprägt ist, kommt der Kenntnis der natürlichen Strahleneinwirkung von innen in diesem Lebensabschnitt der Entwicklung des Embryo besondere Bedeutung zu (49).

2. 5 Altersabhängigkeit des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes beim menschlichen Fötus

Die Messungen des natürlichen ^{226}Ra -Gehaltes menschlicher Fötenknochen von Mens IV bis Mens X ergaben über alle Entwicklungsstadien eine gleichbleibende ^{226}Ra -Aktivität, die der spezifischen ^{226}Ra -Aktivität von Knochen des erwachsenen Menschen entspricht (Abb. 2 , Tab. 6). Die Entwicklungszeit des Föten wird in Mens, einem Zeitraum von 28 Tagen, angegeben.

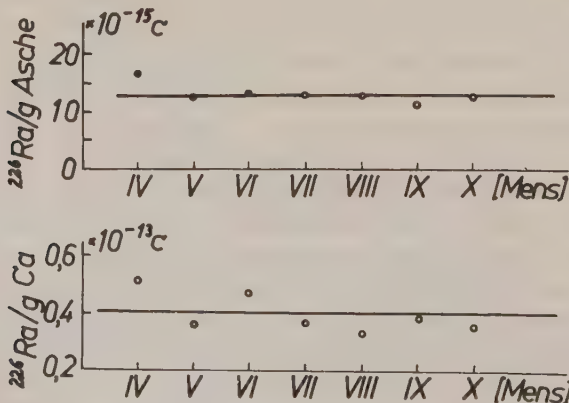


Abb. 2

Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt der Fötenknochen in Abhängigkeit vom Alter

Alter der Föten (Mens)	$^{226}\text{Ra}/\text{g Frischg.}$ (10^{-16}c/g) (Mittelwerte)	Mittlere Schwankungs- breite	$^{226}\text{Ra}/\text{g Asche}$ (10^{-15}c/g) (Mittelwerte)	Mittlere Schwankungs- breite	$^{226}\text{Ra}/\text{g Calcium}$ (10^{-13}c/g) (Mittelwerte)	Mittlere Schwankungs- breite
IV	12,0	--	17,0	--	0,52	--
V	11,3	--	12,6	--	0,36	--
VI	12,6	$\pm 5,6$	13,3	$\pm 4,7$	0,47	$\pm 0,20$
VII	13,2	$\pm 4,7$	13,1	$\pm 6,2$	0,37	$\pm 0,20$
VIII	13,2	$\pm 7,6$	12,8	$\pm 6,8$	0,33	$\pm 0,17$
IX	11,2	$\pm 6,7$	11,3	$\pm 4,3$	0,38	$\pm 0,14$
X	17,5	$\pm 12,7$	12,6	$\pm 6,9$	0,35	$\pm 0,22$
Gesamt- mittel- werte:	13,0	$\pm 9,0$	13,0	$\pm 6,0$	0,40	$\pm 0,20$

Tabelle 6 ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Fötenknochen
(siehe auch Tabelle III, Anhang)

Der für die einzelnen Altersstufen gemessene ^{226}Ra -Gehalt wurde auf Asche, Frischgewicht und Calcium bezogen (Tabelle 6) (Tabelle III, Anhang). In Tabelle 6 sind außerdem die mittleren Schwankungen der spezifischen ^{226}Ra -Mittelwerte angegeben. Die gesamte mittlere Schwankung setzt sich aus dem Meßfehler und der durch die biologische Variabilität bedingten Schwankung des ^{226}Ra -Gehaltes der einzelnen Knochenwerte zusammen. Der Meßfehler für jeden Wert in Tabelle III, Anhang, beträgt $\pm 30\%$. Der Einengungsfaktor der Knochenproben für die verschiedenen Alter ist unterschiedlich und liegt natürlich höher als bei den Knochen des erwachsenen Menschen. Er liegt im Mittel bei 10 (Tabelle 7). Die für die verschiedenen Altersstufen bestimmten Einengungsfaktoren sind in der Tabelle 7 aufgeführt.

Alter der Föten (Mens)	Einengungsfaktor $\frac{\text{Frischgewicht}}{\text{Aschengewicht}}$ (Mittelwerte)	mg Ca/g Asche (Mittelwerte)
IV	13,3	328
V	11,4	353
VI	10,5	325
VII	9,2	321
VIII	9,6	381
IX	7,8	300
X	8,4	360
Erwachsener Mensch	3,8	373

Tabelle 7 Einengungsfaktoren der Fötenknochen
und Calcium-Gehalt pro Gramm Asche
in Abhängigkeit vom Alter

In Abbildung 3 findet man die Häufigkeitsverteilung des ^{226}Ra -Gehaltes dieser Knochenproben. Es zeigt sich eine Verteilung, die der für den ^{226}Ra -Gehalt von Erwachsenenknöchen gefundenen sehr ähnlich ist (siehe Kapitel 1. 2). Der häufigste ^{226}Ra -Wert pro Gramm Asche liegt ebenfalls bei $1 \cdot 10^{-14}\text{c}$. Die mittlere Abweichung ist $\pm 0,6 \cdot 10^{-14}\text{c}$.

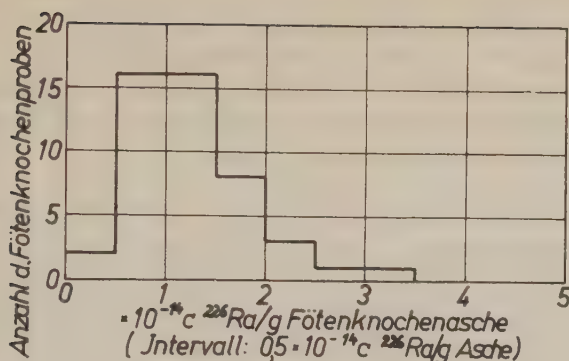


Abb. 3 Häufigkeitsverteilung von ^{226}Ra im menschlichen Fötusknochen

Der für die verschiedenen Altersstufen ermittelte Calcium-Wert, bezogen auf die Aschenmenge, bleibt konstant und entspricht in etwa dem Calcium-Wert der Knochen von Erwachsenen (Tabelle 7) (zur Bestimmung des Calciumgehaltes siehe Seite 14).

Da für Radium und Calcium im Organismus als Erdalkalien wohl ähnliche Metabolismen angenommen werden können, ist damit auch die Altersunabhängigkeit des ^{226}Ra -Gehaltes pro Gramm Asche verständlich. Die leichte Erhöhung der spezifischen Aktivität, die sich bei Proben in Mens IV zeigt (siehe Abb.2), kann nicht als signifikant angesehen werden. Sie liegt noch innerhalb der durch biologische Variabilität möglichen Schwankungen des ^{226}Ra -Gehaltes (vergleiche Werte in Tabelle I, II, III, Anhang). Eine Erhöhung der spezifischen ^{226}Ra -Aktivität, wie sie von HANTKE (21) bei den Messungen des Skelettes von sehr jungen Küken festgestellt wurde, tritt demnach bei den menschlichen Föten nicht auf.

Die einzelnen für diese Messungen verwandten Knochenproben setzten sich meist aus Knochen von mehreren Föten zusammen, da die Knochenaschenmenge für eine Probe mindestens 15 g groß sein muß, um eine noch oberhalb der Nachweisgrenze der Apparatur liegende Aktivität zu erhalten. Die Meßwerte stellen somit bereits Mittelwerte dar. Die in der Tabelle 6 gezeigten Werte für die verschie-

denen Alter des Föten wurden dann durch nochmalige Mittelung dieser Mittelwerte gewonnen. Von den Föten der Entwicklungsstufen Mens IV, V und VI wurden alle verfügbaren Knochen seziiert, wobei eine möglichst gute Trennung zwischen Weichgewebe und Knochen erfolgte. Von den Föten höherer Altersstufen wurden bevorzugt die Knochen der Extremitäten verwandt.

Messungen an fötalem Weichgewebe, bestehend aus Muskeln, Därmen, Leber und Milz ergaben einen ^{226}Ra -Gehalt von etwa $1 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Frischgewicht (Tabelle 8 und Tabelle IV, Anhang). Auch hierfür wurde die Abhängigkeit des spezifischen ^{226}Ra -Gehaltes von den verschiedenen fötalen Altersstufen gemessen. Jeder gemessene ^{226}Ra -Wert ist ein Mittelwert für den Weichgewebegehalt von Muskel, Leber, Darm und Milz eines Föten. Die Meßprobe setzt sich außerdem noch aus Gewebe mehrerer Föten gleichen Alters zusammen. Es wurde jede Probe mindestens 3 mal gemessen. Der Meßfehler beträgt $\pm 30 \%$, da die zu messenden Aktivitäten etwa $3 \cdot 10^{-13} \text{ c}$ groß sind.

Alter der Föten (Mens)	Anzahl der Föten	$^{226}\text{Ra/g}$ Frischg. (10^{-16} c/g) (Mittelwerte)	$^{226}\text{Ra/g}$ Asche (10^{-14} c/g) (Mittelwerte)	$^{226}\text{Ra/g}$ Ca (10^{-13} c/g) (Mittelwerte)
IV	6	1,0	1,1	4,5
V	14	1,0	1,1	3,1
VI	33	1,3	1,2	7,2
VII	21	1,0	1,1	7,9
VIII	6	1,7	1,7	11,9
IX	3	0,8	0,9	6,7
X	5	0,7	1,2	7,9
Gesamtmittelwerte:		1,1	1,2	7,0

Tabelle 8

Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt von fötalem menschlichem Weichgewebe

Die zu messenden Gewebe wurden in mit Bergkristall ausgekleideten Vitreosiltiegeln verascht. Da der natürliche ^{226}Ra -Gehalt dieses Tiegelmateriale vernachlässigbar klein ist, war eine Kontamination des Gewebes während der Veraschung ausgeschlossen. Als Ergebnis dieser Messungen ergab sich, daß der spezifische ^{226}Ra -Gehalt des fötalen Gewebes ebenso groß ist wie beim Gewebe des erwachsenen Menschen (Tabelle 5) und er nicht vom Fötenalter abhängt.

Die spezifische ^{226}Ra -Aktivität von Proben total veraschter Föten liegt in der gleichen Größenordnung wie die in Tabelle 6 zusammengestellten Werte für Fötenknochen. Dies entspricht den Befunden über den geringen Gehalt an ^{226}Ra im Weichgewebe. Die spezifische ^{226}Ra -Aktivität pro Gramm Asche ist für alle Altersstufen des Föten konstant. Der ^{226}Ra -Gehalt des gesamten Föten steigt daher mit dem Wachstum an (Tabelle 9 und Abbildung 4), und zwar besteht entsprechend der Zunahme des Calcium-Gehaltes des Gesamtkörpers in halblogarithmischer Darstellung ein angenähert linearer Zusammenhang zwischen Lebensalter und Radium-Gehalt. Für die Zunahme des Calcium-Gehaltes wurde ein ähnlicher Verlauf bereits von verschiedenen Autoren festgestellt (50) (51) (52). Beim ausgewachsenen Menschen erreicht der ^{226}Ra -Gehalt einen Wert von etwa $0,4 \cdot 10^{-10}\text{c}$ und bleibt für die folgenden Altersstufen dann konstant.

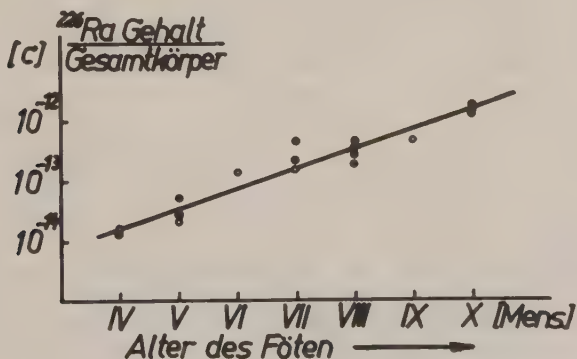


Abbildung 4

Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt des menschlichen Föten in Abhängigkeit vom Alter

Alter des Föten (Mens)	Anzahl der Föten	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Asche (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Frischg. (10^{-16}c/g)	Gesamter ^{226}Ra -Gehalt des Föten (10^{-13}c/Fötus)
IV	7	2,0	2,5	0,17
IV	8	1,8	4,2	0,22
V	5	1,2	2,5	0,44
V	5	1,9	4,5	0,72
V	5	1,0	2,0	0,30
VI	3	1,7	4,5	1,4
VI	4	1,4	3,4	1,7
VII	2	1,3	3,5	1,6
VII	2	1,9	4,4	3,0
VII	2	1,5	3,6	6,4
VIII	2	1,7	4,1	5,5
VIII	1	1,3	3,7	6,0
VIII	1	0,8	2,1	2,4
VIII	1	1,4	3,7	4,7
IX	1	1,5	3,6	6,5
X	1	2,0	6,0	22,0
X	1	1,5	4,2	16,0
X	1	1,4	4,2	11,0

Tabelle 9

Gesamter natürlicher ^{226}Ra -Gehalt
des menschlichen Föten in Abhän-
gigkeit vom Alter

2. 6 Natürlicher Radiumgehalt der menschlichen Plazenta und plazentarer Übergang des Radiums in das fötale Gewebe

Untersuchungen über den ^{226}Ra -Gehalt der Plazenta sollten so- dann zur Klärung der Verhältnisse beim plazentaren Übertritt des natürlichen ^{226}Ra -Isotops beitragen. Wie man aus den Tabellen 5 und 8 ersieht, ist der ^{226}Ra -Mittelwert des Fötenweichteilgewe- bes bezogen auf Frischgewicht, Asche oder Calcium ebenso groß wie die entsprechenden Mittelwerte für die verschiedenen Organe des erwachsenen Menschen.

Ebenso entsprechen innerhalb der biologischen Schwankungsbreite die auf das Frischgewicht bzw. die Asche bezogenen Mittelwerte des ^{226}Ra -Gehaltes der Fötenweichteile denen des Plazentagewe- bes (Tabellen 8 und 10). Hingegen ist für die Plazenta der spezi- fische ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Calcium von $3,5 \cdot 10^{-13} \text{ c/g Calcium}$ niedriger als beim Fötenweichtgewebe, wo der entsprechende Mittel- wert bei $7 \cdot 10^{-13} \text{ c/g Calcium}$ liegt. Der kleinere spezifische

Ca/g Asche (mg)	Ca/g Frischg. (mg)	$^{226}\text{Ra/g Asche}$ (10^{-14} c/g)	$^{226}\text{Ra/g Frischg.}$ (10^{-16} c/g)	$^{226}\text{Ra/g Ca}$ (10^{-13} c/g)
25,1	0,22	1,1	1,0	4,5
24,2	0,28	0,7	0,8	2,9
45,5	0,49	1,6	1,8	3,6
44,4	0,55	1,7	2,1	3,9
60,0	0,70	2,2	2,5	3,6
115,5	1,47	2,4	3,1	2,1
16,5	0,12	0,9	0,7	5,6
38,0	0,42	1,0	1,1	2,6
31,4	0,33	0,9	1,0	3,0
Gesamtmittelwerte:		1,4	1,6	3,5

Tabelle 10 Natürlicher ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Plazenta

^{226}Ra -Wert pro Gramm Calcium des Plazentagewebes ist durch den höheren Calcium-Gehalt dieses Gewebes gegenüber anderen Weichgewebearten bedingt.

Vergleicht man den ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Calcium, der für die verschiedenen Fötenknochen gefunden wurde (Tabelle 6), mit dem ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Calcium der Plazenta (Tabelle 10), so erhält man einen Diskriminierungsfaktor des Plazentagewebes gegenüber dem Knochen für Radium von 1/9.

$$DF_{\text{Plazenta/Fötenknochen}} = DF_1 = \frac{0,4 \cdot 10^{-13} \text{ c } ^{226}\text{Ra/g Ca}}{3,5 \cdot 10^{-13} \text{ c } ^{226}\text{Ra/g Ca}} = \frac{1}{9}$$

Berechnet man aber nun den entsprechenden Diskriminierungsfaktor für das Fötenweichgewebe (Tabelle 8) gegenüber dem Knochen des Föten (Tabelle 6), so ergibt sich wegen des höheren spezifischen ^{226}Ra -Gehaltes des Weichgewebes pro Gramm Calcium ein Faktor von 1/17,5.

$$DF_{\text{Fötenweichgew./Fötenkn.}} = DF_2 = \frac{0,4 \cdot 10^{-13} \text{ c } ^{226}\text{Ra/g Ca}}{7 \cdot 10^{-13} \text{ c } ^{226}\text{Ra/g Ca}} = \frac{1}{17,5}$$

Der Diskriminierungsfaktor, der sich aus dem ^{226}Ra -Gehalt der Organe (Tabelle 5) und Knochen des erwachsenen Menschen ($0,35 \cdot 10^{-13} \text{ c/g Ca}$) errechnet, ergibt einen Wert von 1/21.

$$DF_{\text{Erw.Weichgew./Erw.Kn.}} = DF_3 = \frac{0,35 \cdot 10^{-13} \text{ c } ^{226}\text{Ra/g Ca}}{7,5 \cdot 10^{-13} \text{ c } ^{226}\text{Ra/g Ca}} = \frac{1}{21}$$

Ein Vergleich der ^{226}Ra -Aktivität pro Gramm Calcium in den Weichteilen von Erwachsenen und Föten mit den von MICHELSON (33) und ENGELMANN (27) bestimmten Mittelwerten des ^{226}Ra zu Calcium Verhältnisses von Nahrungsmitteln zeigt, daß sich diese Werte nicht wesentlich voneinander unterscheiden. Das Radium zu Calcium Verhältnis in unseren Nahrungsmitteln entspricht dem des Weichgewebes.

Aus der Tatsache, daß die 3 betrachteten Diskriminierungsfaktoren erheblich kleiner als 1 sind, folgt jedoch für den Radium und Calcium Einbau in den Knochen, daß die Retention des Calciums größer ist als die des Radiums. Aus den DF_2 und DF_3 ersieht man,

daß die Calciumretention etwa das 20-fache der Radiumretention beträgt.

Da der ^{226}Ra -Gehalt bezogen auf Gramm Asche bzw. Frischgewicht sowohl beim Weichgewebe von Erwachsenen als auch beim fötalen und plazentaren Gewebe innerhalb der biologischen Variabilität gleich ist und der beobachtete Diskriminierungsfaktor DF_1 eher größer ist als die beiden übrigen Diskriminierungsfaktoren DF_2 bzw. DF_3 , ist eine bevorzugte Diskriminierung des ^{226}Ra durch die Plazentaschranke nicht anzunehmen.

Versuche von KRIEGL mit Albinoratten, bei denen in die Schwanzvene der Mutter jeweils 21 Tage vor und kurz nach der Konzeption sowie am 10. und 17. Tag der Gestationsperiode das Isotop ^{90}Sr trägerfrei eingespritzt wurde, ergeben, daß für dieses Erdalkali-Isotop die Plazenta ebenfalls nicht als Schranke anzusehen ist (54). Bei den Experimenten hatte der Fötus eine 38-fach höhere spezifische ^{90}Sr -Aktivität als die Plazenta. Da es sich hier um einen Vergiftungsfall handelt, ist der Unterschied in der spezifischen Aktivität von Fötus und Plazenta besonders stark ausgeprägt und zeigt deutlich, daß das Erdalkali ^{90}Sr nahezu ungehindert die Plazenta passiert.

Untersuchungen von MAC DONALD und Mitarbeitern über die Gewebsverteilung und den plazentaren Übertritt von Radiostrontium bei trächtigen Rhesus-Affen nach Injektion des radioaktiven Nuklides in das fötale und mütterliche Kreislaufsystem zeigten ebenfalls, daß für Radiostrontium keine plazentare Schranke existiert (55).

Die hier vorgetragenen Ergebnisse wiesen auf ein gleiches Verhalten für das ^{226}Ra hin. Es kann aus ihnen geschlossen werden, daß das radioaktive Nuklid ^{226}Ra ähnlich wie ^{90}Sr gut durch biologische Membranen hindurchdiffundiert.

Der natürliche ^{210}Pb - und ^{210}Po -Gehalt
im Körper des Menschen

Der ^{226}Ra -Gehalt des Erdbodens bedingt, daß in der Atmosphäre immer eine bestimmte Konzentration seines Zerfallsproduktes Radon aufrechterhalten bleibt. Dieses diffundiert aus den oberen Erdschichten in den darüber befindlichen Luftraum und gelangt durch Quellen und Erdspalten auch aus großen Tiefen an die Oberfläche.

Wie JAKI und HESS nachwiesen, wird durch Regen das Entweichen des Gases aus der Bodenoberfläche verhindert (56). Als Folge davon kann in den obersten Bodenschichten eine Anreicherung von Radon auftreten. Der Gleichgewichtswert mit ^{226}Ra wird aber nur dann überschritten, wenn der Radiumgehalt mit der Tiefe der Bodenebene ansteigt.

Der Radongehalt der Luft über einem bestimmten Bodenareal ist aus diesen Gründen im allgemeinen nicht proportional dem ^{226}Ra -Gehalt der oberen Bodenschichten. In einer Arbeit über Untersuchungen zur Frage der Strahlenbelastung der Lunge bei Aufenthalt in radonhaltiger Atmosphäre wurde bereits im Jahre 1957 von AURAND, FEINE, JACOBI und SCHRAUB auf die Bedeutung des Edelgases Radon und seiner Folgeprodukte im Erdboden und in der Pflanzenwelt hingewiesen (57). Radon ist Ausgangssubstanz einer radioaktiven Zerfallsreihe, die über kurzlebige Zwischenprodukte zu dem langlebigen Blei-Isotop ^{210}Pb führt. Dieses hat eine Halbwertszeit von 19,4 Jahren und ist eine β - und γ -strahlende Substanz, die in das ^{210}Bi , einen β , γ -Strahler mit einer Halbwertszeit von 5 Tagen, zerfällt. Aus diesem bildet sich dann das α -strahlende Nuklid ^{210}Po mit einer Halbwertszeit von 138,5 Tagen.

Die Folgeprodukte dieses Radons lagern sich in der Luft an Teilchen des Aerosols an und werden durch Regentropfen wieder zum Boden zurücktransportiert (58). An der Bodenoberfläche bzw. in der obersten Bodenschicht wird so das langlebige ^{210}Pb -Isotop mit seinen Folgeprodukten angereichert. Als Stütze für diesen Zyklus können Messungen von HILL angesehen werden, in denen ein linearer Zusammenhang zwischen der α -Aktivität des Grases und

dem jährlichen Regenfall festgestellt wurde (59).

Den oberirdischen Teilen der Pflanzen wird das ^{210}Pb -Isotop aus der Luft sowohl durch Niederschläge als auch durch Ablagerung der radioaktiven Teilchen des Aerosols zugeführt (60) (61) (62) (63). Die Pflanzen nehmen außerdem das ^{210}Pb -Isotop auch noch durch das Wurzelsystem aus dem Boden auf.

Da das ^{210}Pb über das Wasser und die Nahrungsmittel sowie durch die Atemluft auch in den menschlichen Körper gelangt, kommt in Bezug auf die Abschätzung des natürlichen radioaktiven Gehaltes einer Bestimmung der ^{210}Pb - bzw. ^{210}Po -Radioaktivität des menschlichen Körpers Interesse zu.

3. 1 Der ^{210}Pb -Gehalt des menschlichen Knochens

Messungen von HOLTZMAN (41) an 45 Knochenproben ergaben für den ^{210}Pb -Gehalt des menschlichen Knochens einen Mittelwert von $4 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Frischgewicht bzw. $1,4 \cdot 10^{-13} \text{ c/g}$ Asche; HILL und JAWOROWSKY (39) fanden für Knochen einen Wert von $2,4 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Frischgewicht, und HURSH (64) erhielt aus 18 Krematoriumsaschen einen Mittelwert von $1,5 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Knochen. Ziel eigener Untersuchungen war nun festzustellen, inwieweit die auftretenden Diskrepanzen zwischen den ^{210}Pb -Werten der verschiedenen Autoren durch normale biologische Schwankungen des Bleigehaltes der verschiedenen Individuen bedingt sind.

Zur Ermittlung der ^{210}Pb -Aktivität von Tibia- und Femur-Knochen wurde in etwa 2 Jahre alten Knochenaschen der ^{210}Po -Gehalt mit Hilfe einer chemischen Methode angereichert (Kapitel 3. 2) und anschließend die Polonium-Aktivität gemessen (66). Nach der Gleichung für das laufende radioaktive Gleichgewicht zwischen Muttersubstanz und Tochtersubstanz, bei der der Zerfall der Muttersubstanz mitberücksichtigt wird, wurde dann die ursprüngliche ^{210}Pb -Aktivität zum Zeitpunkt der Sektion $t = 0$ aus der gemessenen ^{210}Po -Aktivität berechnet. Aufgrund der Untersuchungen von HOFFER (67) ist die Annahme berechtigt, daß während der Veraschung von Knochenteilen bei einer Temperatur von $500 - 600^\circ\text{C}$ kein merklicher Anteil an ^{210}Pb verdampft. Bei der chemischen Analyse zur ^{210}Po -Bestimmung ist der Sauberkeit der verwendeten Glasgefäße und der Reinheit der Chemikalien besondere Aufmerksam-

keit zuzuwenden. Insbesondere muß der ^{210}Po -Gehalt aller Hilfsmittel sorgfältig überprüft werden. Die gemessene ^{210}Po -Aktivität ist mit dem Polonium-Nullwert von 0,1 I/min zu korrigieren. Der korrigierte Wert entspricht dann der Aktivität des ^{210}Pb .

Das zu messende Polonium wurde aus einer 0,5 n Salzsäure unter dauerndem Rühren bei Zimmertemperatur innerhalb von 12 Stunden auf einer dünnen Silberfolie elektrochemisch abgeschieden (40). Es ist empfehlenswert, die Messung dieser abgeschiedenen Polonium-Atome möglichst unmittelbar nach der Abscheidung durchzuführen. Bei einigen etwa 30 Tage alten Proben zeigte sich, daß die im α -Plateau des Methandurchflußzählrohres gemessene Zählrate um 20 % tiefer lag, als nach der über die Halbwertszeit berechneten Aktivität zu erwarten war. Es ist anzunehmen, daß diese Verringerung der Zählrate einmal durch den von LAWSON beschriebenen Aggregatrückstoß, bei dem sich mehrere Polonium-Atome von der Unterlage losreißen, erklärt werden kann und zum anderen auf die Selbstabsorption von α -Teilchen in der Silberfolie zurückzuführen ist (68). Bei einer Oxydation der Silberfolie wird die Poloniumschicht von einer Oxydschicht überlagert. Die Absorption der α -Strahlung in dieser Deckschicht nimmt mit zunehmender Oxydation der Unterlage zu (68). Eine Abnahme der ^{210}Po -Radioaktivität kann außerdem durch eine Diffusion der Polonium-Atome in die Unterlage vorgetäuscht werden (68). Von MONTEL konnte eine Diffusion der Polonium-Atome in einen Bleikristall nachgewiesen werden (69). Für diese Diffusion ist allerdings die Anwesenheit von Spuren von Säuren erforderlich (68) (69).

Die Messung der α -Teilchen des Poloniums im Methandurchflußzählrohr muß im α -Plateau der Zählrohrcharakteristik erfolgen. Mißt man nämlich einen auf Silber abgeschiedenen α -Strahler im β -Plateau, so erhält man eine Erhöhung der Zählrate auf den fast doppelt so hohen Wert. Eine Überprüfung der Proben ergab, daß dieser Effekt nicht durch eine Verseuchung mit ^{210}Pb , ^{210}Bi oder irgend einem anderen radioaktiven Nuklid auf dem Silberblech hervorgerufen wurde. Die Zählrate reduzierte sich erst dann wieder auf den im α -Plateau gefundenen Wert, nachdem das Silberblech mit einer dünnen Zaponlackfolie (die Foliendicke beträgt

etwa $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) abgedeckt war.

Daraus folgt, daß diese Erhöhung der Zählrate auf die beim α -Zerfall der Polonium-Atome auftretenden Rückstoßatome zurückzuführen ist. Diese Rückstoßatome werden im β -Bereich infolge der hohen Gasverstärkung gezählt (70).

Mit Hilfe einer Polonium-Lösung bekannter Zerfallsrate wurde die Zählzählbeute für das α -Plateau des Methandurchflußzählrohres kalibriert und sodann über die auf den Silberblechen abgeschiedene Poloniumaktivität der chemische Aufbereitungsfehler bestimmt. Es zeigt sich, daß der Fehler bei der chemischen Aufbereitung kleiner als $\pm 5 \%$ ist. Der mittlere Gesamtfehler bei der Bestimmung der ^{210}Pb -Aktivität von menschlichen Knochen ist daher nicht größer als $\pm 10 \%$. Der Mittelwert der gemessenen ^{210}Pb -Aktivitäten des menschlichen Knochens beträgt pro Gramm Asche $1,3 \cdot 10^{-13} \text{c}$, pro Gramm Frischgewicht erhält man $3,7 \cdot 10^{-14} \text{c}$ (Tabelle 11).

Dieses Resultat stimmt mit den Mittelwerten von HOLTZMAN, HILL und JAWOROWSKY gut überein (41) (39) (65).

Daneben wurden zum Vergleich noch Messungen des ^{210}Pb -Gehaltes verschiedener tierischer Knochen durchgeführt. Es ergaben sich pro Gramm Knochenfrischgewicht die folgenden spezifischen ^{210}Pb -Aktivitäten :

Hirschknochen	$0,5 \cdot 10^{-12} \text{c/g}$
Rentierknochen	$4,5 \cdot 10^{-12} \text{c/g}$
Rehknochen	$0,2 \cdot 10^{-12} \text{c/g}$

Der hohe ^{210}Pb -Gehalt der Rentierknochen ist durch den hohen Anteil dieses Nuklids in Moosen und in Flechten bedingt, die ein Hauptnahrungsmittel des Rentiers darstellen. In verschiedenen Flechten und Moosen wurden ^{210}Pb -Aktivitäten in einem Bereich von $2 \cdot 10^{-12} \text{c}$ bis $4 \cdot 10^{-12} \text{c}$ pro Gramm Trockengewicht gefunden.

Alter (a)	Geschlecht	$^{210}\text{Pb}/\text{g Asche}$ (10^{-13} c/g)	$^{210}\text{Pb}/\text{g Frischgew.}$ (10^{-14} c/g)
17	m	2,1	6,3
34	m	1,7	3,6
36	f	1,1	2,7
47	m	1,0	2,1
50	f	1,5	3,1
51	f	1,1	3,7
52	m	1,0	2,1
54	m	2,0	9,0
55	m	1,8	6,4
56	f	1,5	4,6
57	m	1,3	5,0
58	m	0,8	1,1
58	m	1,3	4,2
59	f	1,2	4,0
60	m	0,9	3,9
61	m	1,5	3,2
62	f	0,7	1,2
63	m	0,6	2,3
77	f	1,6	4,2
83	m	1,0	2,1
Mittelwerte:		1,3	3,7
Mittlerer Fehler der Messung:		$\pm 0,1$	$\pm 0,3$
Mittlere Schwankungs- breite der biologischen Variabilität:		$\pm 0,4$	$\pm 1,7$

Tabelle 11

Der natürliche ^{210}Pb -Gehalt menschlicher Knochen (Femur und Tibia)

3. 2 Der ^{210}Po -Gehalt des menschlichen Knochens

Als nächstes war die Frage zu klären, welches Verhältnis zwischen dem ^{210}Po -Gehalt und dem ^{210}Pb -Gehalt im Knochen des lebenden Organismus besteht. Für Knochenproben von Rippen, Wirbeln, Becken und Gelenkstücken bestimmte HOLTZMAN, daß das Aktivitätsverhältnis von ^{210}Po zu ^{210}Pb im lebenden Organismus des Menschen einen Wert von $1 \pm 0,2$ ergibt (41) (65).

Experimente von BLACK über die Polonium-Ablagerung in den Knochen von Mäusen zeigten, daß sich etwa 50 % des dem Körper zugeführten Poloniums im Knochen ablagert. Diese Polonium-Verteilungsstudien wurden an Mäusen durchgeführt, die 15 Stunden einer Atmosphäre mit hoher Radonkonzentration ausgesetzt waren und 100 Tage danach starben (40) (71). HURSH (64) nimmt auf Grund dieser Experimente an, daß nur etwa 50 % des durch den ^{210}Pb -Zerfall entstehenden Poloniums im Knochen verbleiben, und setzt dabei voraus, daß das gesamte im Körper vorliegende ^{210}Pb im Knochen eingelagert ist. Zur Bestimmung der Polonium-Aktivität des Knochens in vivo halbierte er daher die von ihm aus alten Krematoriumsaschen ermittelten ^{210}Pb -Werte. Die so erhaltene ^{210}Po -Aktivität beträgt dann $7,5 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Knochen-Frischgewicht. Messungen von HOLTZMAN (41) ergaben dagegen $4 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Frischgewicht.

Zur Klärung dieser Unterschiede wurden in der vorliegenden Arbeit auch Messungen der ^{210}Po -Aktivität des menschlichen Knochens vorgenommen. Den bisher bekannten Verfahren zur Bestimmung von ^{210}Po in biologischem Material, insbesondere im Knochen, haften gewisse experimentelle Schwierigkeiten an, die zu Unsicherheiten bei der Beurteilung der Meßergebnisse führten und weitere klärende Versuche erforderlich machten (66). Bei den bisher üblichen Verfahren der nassen Oxydation organischer Proben zur ^{210}Po -Bestimmung raucht man die Probe mehrmals mit konzentrierter Salpetersäure bzw. Perchlorsäure ab. Da hierbei in offenen Gefäßen gearbeitet wird, werden große Mengen Oxydationsmittel benötigt. Außerdem ist diese Form des Eindampfens sehr zeitraubend, und die Geräte müssen ständig unter Aufsicht stehen. Die Proben werden daher neuerdings in einer Rückflußapparatur

gekocht, bei der die Möglichkeit besteht, das bei der Oxydation entstehende Wasser kontinuierlich zu entfernen und damit die benötigte Säurekonzentration aufrechtzuerhalten. Gleichzeitig wird eine Erhöhung der Reaktionstemperatur erreicht. Da die Reaktion in einer geschlossenen Apparatur abläuft, kann außerdem auf die ständige Beobachtung verzichtet werden. Diese Methode der Aufarbeitung verlangt auch bei größeren Probenmengen einen Zeitaufwand von nur 2 bis 3 Tagen. Bei den für eine genügend genaue Aktivitätsbestimmung benötigten großen Probenmengen hat sich eine zusätzliche Reinigungsfällung sowie die Abtrennung sämtlicher Metalle durch Fällung aus schwach ammoniakalischer Lösung als günstig erwiesen. Das ^{210}Po wird anschließend noch angereichert, indem man es mittels eines Wismut-Trägers aus salzsaurer Lösung zusammen mit Bi_2S_3 als Po_2S_3 ausfällt (ca. 50 mg Wismut-Träger). Der verwendete Wismut-Träger enthält selbst geringe Mengen ^{210}Po , daher ist er vorner durch elektrochemische Abscheidung auf Ag-Schnitzeln zu reinigen. Die endgültige Abtrennung des ^{210}Po vom Wismut erfolgt nach Auflösung des Wismut-Poloniumsulfid-Niederschlags in 0,5 n Salzsäure in der üblichen Weise durch Abscheidung auf Ag-Folie. Die Polonium-Ausbeute liegt für dieses Verfahren konstant bei über 95 %.

Zur Ermittlung des ^{210}Po -Wertes von Knochen in vivo wurden frische Tibia- und Femur-Proben unmittelbar nach der Sektion in der beschriebenen Art aufgearbeitet (66). Die Benutzung eines solchen Verfahrens zur Bestimmung des ^{210}Po -Gehaltes aus frischen, unveraschten Knochen ist notwendig, weil bei dem Veraschungsprozeß im Ofen zwischen 500 und 600° C ein Teil des ^{210}Po verdampft. Der in der Probe zurückbleibende Polonium-Anteil hängt dabei noch von der Knochenart ab. Es zeigte sich, daß die Polonium-Verluste durch Verdampfen im Mittel zwischen 50 und 70 % liegen. Bei einigen Proben wurde sogar beobachtet, daß bei der Veraschung der gesamte Polonium-Gehalt verdampfte. Die unter Verwendung der "Naßveraschung" gefundenen Polonium-Werte von Knochen sind in Tabelle 12 zusammengefaßt.

Der bei der chemischen Aufbereitung, der elektrochemischen Abscheidung und der Messung dieser Polonium-Aktivität entstehende mittlere Fehler beträgt $\pm 10\%$.

Alter (a)	Geschlecht	^{210}Po , g Asche (10^{-15} g/g)	^{210}Po , g Knochenschw. (10^{-14} g/g)
35	f	0,9	2,4
37	m	1,4	3,5
50	f	1,4	3,7
53	m	0,6	2,4
53	m	1,1	2,6
56	m	2,1	5,0
57	m	1,5	3,1
58	m	2,2	5,6
60	m	0,8	2,6
60	m	1,1	2,9
62	m	2,1	4,3
62	m	1,1	2,4
62	f	0,7	1,9
63	m	1,7	3,8
63	m	1,5	3,9
64	f	1,9	4,5
64	f	0,7	1,5
65	f	1,5	4,1
68	m	1,5	3,7
70	f	0,9	1,4
71	f	2,4	3,9
82	f	0,6	1,5
Mittelwerte:		1,3	3,1
Mittlerer Fehler der Messung:		$\pm 0,1$	$\pm 0,3$
Mittlere Schwankungs- breite der biologischen Variabilität:		$\pm 0,5$	$\pm 1,0$

Tabelle 12

Der natürliche ^{210}Po -Gehalt menschlicher Knochen (Femur und Tibia)

Der ^{210}Po -Gehalt pro Gramm Femur- oder Tibia-Knochen ergibt sich im Mittel zu $3 \cdot 10^{-14}$ c. Vergleicht man diesen Wert mit dem vorher bestimmten ^{210}Pb -Wert pro Gramm Frischgewicht, so deuten diese Ergebnisse darauf hin, daß sich im Skelett des lebenden Organismus ^{210}Po und ^{210}Pb nur angenähert im radioaktiven Gleichgewicht befinden; das ermittelte Radioaktivitätsverhältnis von ^{210}Po zu ^{210}Pb beträgt 0,8. Gestützt wird diese Feststellung durch die Messung der ^{210}Po -Aktivität von Rippen, Becken und Sternum des Menschen durch BLACK und HILL, die vergleichbare Werte fanden (40) (72).

3. 3 Verteilung des ^{210}Po -Gehaltes im menschlichen Körper

Zum Studium der Verteilung des gesamten ^{210}Po im menschlichen Körper wurde nach den beschriebenen chemischen Verfahren auch der ^{210}Po -Gehalt einiger Organe untersucht (Tabelle 13). Es fanden dabei jeweils Proben von 150 bis 200 Gramm Gewebe Verwendung, die naß verascht und in der üblichen Weise aufgearbeitet wurden. Chemische Ausbeutebestimmungen mit Hilfe von Polonium-Lösungen bekannter Aktivität zeigten, daß auch hier weniger als 5 % der zugegebenen ^{210}Po -Aktivität bei der chemischen Aufarbeitung verloren gehen.

Zur Berechnung der Poloniumverteilung im menschlichen Körper wurden die Mittelwerte benutzt, die sich aus jeweils drei verschiedenen Probenmessungen ergaben (Tabelle 13), wobei sich die einzelnen Proben jeweils aus Organstücken (z.B. Leberteilen) verschiedener Individuen zusammensetzten. Wie man aus Tabelle 13 ersieht, entfällt auf das Skelett ein Anteil von ca. 60 % Polonium. Die im Gewebe verschiedener Organe gefundenen Polonium-Werte stimmen gut mit den Polonium-Messungen von HILL überein, die aus α -spektrometrischen Messungen an einer großen Ionisationskammer erhalten wurden (72).

Messungen von HOLTZMAN über die Verteilung von ^{210}Pb zeigten, daß 63 % der im Gesamtkörper vorhandenen ^{210}Pb -Menge im Skelettsystem abgelagert ist (73). Hierbei wird allerdings vorausgesetzt, daß sich in allen Organen ^{210}Pb und ^{210}Po im Gleichgewicht befinden (65). Der ICRP-Bericht gibt einen Anteil von 55 % für das auf das Skelett entfallende ^{210}Pb an (14) (73).

Organ	Gewichtsanteil der Organe [%]	$^{210}\text{Po}/\text{g}$ Frischgew. (10^{-14}c/g)	$^{210}\text{Po}/\text{g}$ Frischgew. Mittelwerte (10^{-14}c/g)	Bruchteil der Gesamtaktivität [%]
Leber	2,40	0,5 1,0 2,5	1,3	5,9
Milz	0,21	0,1 0,5 0,3	0,3	0,1
Muskel	43,00	0,05 0,15 0,4	0,2	16,3
Niere	0,43	0,5 0,6 0,4	0,5	0,4
Knochen	10,00		3,2	60,5
andere Organe (darür ^{210}Po - Gehalt der Muskulatur an- genommen)	44,00		0,2	16,6

Tabelle 13 Verteilung des natürlichen ^{210}Po -Gehaltes
im menschlichen Körper

Messungen von HOLTZMAN und TRIPTON über den stabilen Bleigehalt des menschlichen Skeletts ergaben übereinstimmend, daß sich 83 % vom Gesamtwert im Skelett befinden (73). Dem ICRP-Bericht II aus dem Jahre 1959 zufolge liegt dieser Wert zwischen 55 und 70 % (14) (73).

Da nach diesen Daten der Knochen für Blei bzw. ^{210}Pb kritisches Organ ist, nicht aber für das Polonium, muß der Hauptteil des im Knochen gefundenen Poloniums vom Zerfall des ^{210}Pb herrühren. Aus Tabelle 12 des ICRP-Berichtes ersieht man, daß sich nur etwa 8 % des dem Körper zugeführten reinen, nicht an ^{210}Pb gebundenen, ^{210}Po im Knochen ablagert (14). Der im Knochen gefundenen ^{210}Po -Aktivität von $3 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ stent im Mittel eine ^{226}Ra -Aktivität des Knochens pro Gramm Gewebe von etwa $3,3 \cdot 10^{-15} \text{ c}$ gegenüber. Berechnet man die vom ^{226}Ra und seinen Folgeprodukten herrührende Strahlenbelastung des Knochens, so ergibt sich eine mittlere Dosis von 0,65 mrad pro Jahr. (Für die Retention des Rn im Knochen wurde ein Wert von 30 % gewählt.)

Der Gehalt an ^{210}Po führt hingegen zu einer Belastung mit einer Dosis von 3,1 mrad pro Jahr (siehe Kapitel 9). Die vom ^{210}Po herrührende mittlere Dosis ist also etwa 4 mal höher als die vom ^{226}Ra und seinen kurzlebigen Folgeprodukten. Da das Skelettgewicht (kompakte Knochen) etwa 10 % vom Gesamtkörpergewicht ausmacht, ist bei einem Poloniumanteil von 60 % die Dosisbelastung des Skeletts etwa 10 mal größer als die der übrigen Organe des Körpers.

Der Gesamtkörpergehalt an ^{210}Po errechnet sich für ein Skelettgewicht (kompakte Knochen + Knochenmark) von 10 kg und ein Gewicht des Weichgewebes von 60 kg zu 490 μpc . Für das Weichgewebe wurde dieser Berechnung ein Mittelwert der spezifischen ^{210}Po -Aktivität pro Gramm Frischgewicht von $0,3 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ zugrunde gelegt.

4 Messungen von α -strahlenden Nukliden mit Zinksulfid-Schirmen

Da die Messung der natürlichen α -Strahlung in Bezug auf die Kenntnis der natürlichen Strahlenbelastung des Menschen von Bedeutung ist, wurde von MAYNEORD, RADLEY und TURNER eine Szintillationsmethode zur Messung der Aktivität α -strahlender Nuklide entwickelt (74). Bei dieser Methode wird das Material zunächst bei 600 bis 700 ° C verascht und pulverisiert. Zum Nachweis der α -Teilchen dient ein auf der einen Seite mit einer Klebefolie überzogener Plexiglasring, dessen innere Klebefläche mit fein gepulvertem Zn-Cd-Sulfid(Ni) als Szintillatorsubstanz belegt ist. Die zu messende Probe wird auf diese Schicht von etwa 10 mg/cm² aufgelegt und mit einer Klebefolie abgedeckt. Die Aktivitätsmessung erfolgt nun in der üblichen Weise mit Hilfe eines Multipliers in Verbindung mit der entsprechenden Zählapparatur. Da die nachzuweisenden niedrigen Impulsraten sehr lange Meßzeiten bedingen, ist eine sehr gute elektronische Stabilität und ein entsprechend kleiner Null-effekt der Nachweisapparatur zu fordern. Zur Unterdrückung der Impulse geringer Energie, die von β -oder γ -Strahlen herrühren können, war eine Diskriminatorstufe vorgeschaltet.

4. 1 Berechnung der Zählgeometrie zur Bestimmung der insgesamt emittierten α -Teilchen

Zur Berechnung der Zählgeometrie nehmen wir an, daß der Szintillator gleichmäßig mit einer Alphastrahlen emittierenden Substanz der Dicke d belegt ist (Abbildung 5).

R sei die Reichweite der α -Teilchen im radioaktiven Material, dA = dh ein Volumenelement der aktiven Substanz im Abstand h von der Zinksulfid-Schicht. Werden von jedem Volumenelement der Meßprobe N α -Teilchen pro cm³ und sec emittiert, dann ergibt sich die Zahl der pro cm² und sec aus der Probe austretenden Teilchen zu (74) (75) :

$$(1) \quad N_{/\text{cm}^2}^{\alpha} = \frac{N}{2} \int_{h=0}^{h=d} \left(\frac{R-h}{R} \right) \cdot dh = \frac{N \cdot d}{2} \left(1 - \frac{d}{2R} \right)$$

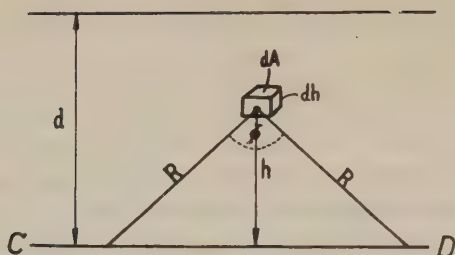


Abb. 5 Skizze zur Berechnung des wirkenden Anteils der α -Strahlung

Falls die Probendicke groß ist gegen die Reichweite, läßt sich Gleichung 1 für die aus der Fläche A austretenden α -Teilchen N_A vereinfachen zu

$$(2) \quad N^* \cdot A = N_A = \frac{N \cdot R \cdot A}{4}$$

Die spezifische Aktivität einer Substanz der Dichte ρ errechnet sich aus den pro Stunde gemessenen Impulsen N_A abzüglich Null-effekt nach der Gleichung 3

$$(3) \quad S = \frac{4N_A}{R \cdot A \cdot \rho} \cdot \frac{1}{3,7 \cdot 10^{10} \cdot 3,6 \cdot 10^3}$$

$$S = \frac{N_A}{R \cdot A \cdot \rho} \cdot 3,008 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$$

Zur Bestimmung von $R \cdot \rho$ wurde eine Formel von GLASSON (76) herangezogen

$$(4) \quad R \cdot \rho = 3,2 \cdot 10^{-4} \cdot R_0 \cdot Z^{2/3} \text{ g/cm}^2$$

R_0 ist hierbei die praktische Reichweite der α -Teilchen in Luft in cm. Das Produkt $R \cdot \rho$ ist proportional $Z^{2/3}$ und daher weitgehend unabhängig von der veraschten Substanz. Bei mittleren

Z-Werten zwischen 10 und 12 verändert sich $Z^{2/3}$ und damit $R \cdot \rho$ nicht mehr als um 13 % (74). Daraus folgt, daß die zu erwartende Impulsrate bei gleicher spezifischer Aktivität nicht wesentlich von der Dichte des Materials abhängt. Für R_0 hat man eine durchschnittliche Reichweite zu berechnen und in Gleichung 4 einzusetzen, da bei der angewandten Meßmethode alle Alphateilchen der sich im radioaktiven Gleichgewicht befindenden Glieder der Uran- und Thoriumreihe registriert werden. Die Berechnung dieser durchschnittlichen Reichweite setzt die Kenntnis der im Körper abgelagerten Ausgangsglieder einer jeden Reihe voraus sowie des Verhältnisses der einzelnen Folgeglieder zum Zeitpunkt der Messung.

Für Knochenasche wurde bezüglich der Thorium-Reihe angenommen, daß die Thorium-Isotope durch Zerfall des Radium-Isotops Mesothor entstehen, das bevorzugt im Skelett des menschlichen Körpers abgelagert wird. Als erster α -Strahler tritt in dieser Reihe das ^{228}Th auf, das somit als Ausgangspunkt der Reihe anzusehen ist (74).

4. 2 Überlegungen zur Ermittlung der ^{228}Th -Aktivität

Ein Beweis für das Vorhandensein von Produkten der Thoriumreihe in der Probe liefert die Tatsache, daß bei sehr niedrigen Zählraten mehrfach Koinzidenzen von zwei aufeinanderfolgenden α -Teilchen auftreten. Diese entsprechen den beiden sehr rasch erfolgenden α -Übergängen Thoron zu Thorium A und Thorium A zu Thorium B. Da die Halbwertszeit von Thorium A nur 0,16 sec beträgt und in der Radiumreihe eine solche analoge Folge von Zerfällen nicht vorkommt, ist dieser Doppelzerfall ein eindeutiger Beweis für die Anwesenheit von Thoriumgliedern. Für eine angemessene Koinzidenzzeit (0,32 sec, das Zweifache der Halbwertszeit des Thorium A) gibt die Häufigkeit der beobachteten Doppelimpulse ein Maß für die Radiothoraktivität. Dabei wird allerdings vorausgesetzt, daß sich ^{228}Th mit seinen Folgeprodukten im radioaktiven Gleichgewicht befindet. Dieser Voraussetzung ist bei der Präparation der Proben durch Verschließen derselben und entsprechend langer Wartezeit Rechnung zu tragen. Zur Berechnung der ^{228}Th -Aktivität ist die gemessene Koinzidenzrate natürlich

noch mit der zufälligen Koinzidenzrate zu korrigieren, um die wahre Anzahl der Koinzidenzen zu erhalten, die von Doppelzerfällen der Thoriumreihe ausgelöst werden (siehe hierzu Kapitel 5. 7. 5).

4. 3 Theoretische Bestimmung der ^{228}Th -Aktivität

Nach Abbildung 5 ergibt sich der Bruchteil der Doppelzerfälle in dem Volumenelement $dA \cdot dh$ innerhalb des Winkels $\varnothing$ zu $\left[\frac{1}{2} \left(1 - \frac{h}{R} \right) \right]^2 dA \cdot dh$. Mit n Doppelzerfällen pro cm^3 der Probe und pro Zeiteinheit erhält man entsprechend für die unter dem Winkel $\varnothing$ beobachteten zweifachen Koinzidenzen $\frac{n}{4} \left(1 - \frac{h}{R} \right)^2 \cdot dA \cdot dh$. Bei einer Probe der Dicke d werden insgesamt pro sec und cm^2 registriert :

$$(5) \quad N_p = \frac{n}{4} \int_{h=0}^{h=d} \left(1 - \frac{h}{R} \right)^2 \cdot dh = \frac{n}{4} \left[d - \frac{d^2}{R} + \frac{d^3}{3R^2} \right]$$

Für den Sonderfall $d \geq R$ gilt

$$(6) \quad N_p = \frac{n \cdot R}{12}$$

Im Gleichgewichtszustand der Zerfallsreihe mit der Muttersubstanz ^{228}Th kommen auf jeden Doppelzerfall fünf Einzelzerfälle. Ist N die gesamte Anzahl der α -Zerfälle, die pro cm^3 in der Zeiteinheit emittiert werden, so gilt $N = 5n$. Mit dieser Bedingung kann man Gleichung 6 neu formulieren und die gesamte Anzahl der α -Zerfälle N in die Gleichung einführen :

$$(7) \quad N_p = \frac{N \cdot R}{60}$$

Ein Szintillator mit der Fläche $A \text{ cm}^2$ beobachtet in einer Probe, deren Dicke d groß ist gegenüber der Reichweite der α -Teilchen und die aus Material der Dichte ρ besteht, pro Zeiteinheit die folgende Anzahl von zweifachen Koinzidenzen :

$$(8) \quad N_p = \frac{N}{60} A \cdot R \cdot \rho$$

Die insgesamt von diesem System registrierten Zerfälle von ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten ergeben sich aus Gleichung 2 zu :

$$N_A = \frac{N}{4} \cdot A \cdot R \cdot \int$$

Das Verhältnis zwischen Doppelimpulsen und der gesamten Anzahl der Einzelimpulse ist demnach :

$$(9) \quad \frac{N_D}{N_A} = \frac{1}{15}$$

Aus der Anzahl der in der Radium- und Thoriumreihe auftretenden α -strahlenden Glieder läßt sich weiterhin für die Gesamtzahl der von jeder dieser Reihen stammenden α -Teilchen folgende Bedingung ableiten :

$$(10) \quad 5 \cdot n_{A, \text{Th-228}} + 4 \cdot n_{A, \text{Ra-226}} = \text{ges. } \alpha\text{-Impulse}$$

Mit Hilfe der beiden Beziehungen 9 und 10 kann man für jede beobachtete Anzahl von echten Doppelimpulsen pro Gesamtanzahl der Einzelimpulse das entsprechende Verhältnis von ^{228}Th zu ^{226}Ra berechnen. Mit diesem Verhältnis von ^{228}Th zu ^{226}Ra und unter Benutzung des aus Gleichung 3 berechneten Wertes für die gesamte spezifische α -Aktivität in c/g erhält man die Aktivitätswerte von ^{226}Ra und ^{228}Th in Curie pro Gramm Probenmaterial. Ein ^{210}Po -Gehalt der Knochenaschen wurde bei dieser Berechnung nicht berücksichtigt.

Das folgende Zahlenbeispiel soll einen Eindruck über die Meßzeiten vermitteln, die notwendig sind, um mit dieser Methode die natürliche Radioaktivität des menschlichen Körpers zu bestimmen.

Aus den Gleichungen 3 und 4 erhält man :

$$(11) \quad S = \frac{N_A}{R_0 \cdot A \cdot Z^{2/3}} \cdot 9,4 \cdot 10^{-11} \text{ c/g}$$

N_A ist dabei die Anzahl der beobachteten Impulse abzüglich Nulleffekt pro Stunde bei einer Größe des Zinksulfidschirms von $A \text{ cm}^2$. Wenn man die Berechnung für ^{226}Ra und seine Folgeprodukte durchführen will, hat man für R_0 die durchschnittliche Reichweite von ^{226}Ra und seinen Folgeprodukten in Luft einzusetzen. Diese beträgt $4,64 \text{ cm}$. $Z^{2/3}$ läßt sich für Knochenasche zu $5,07$ ermitteln (74). Bei einem Scheibendurchmesser der in dieser Arbeit benutzten, mit Zinksulfid belegten Scheibenfläche von $4,6 \text{ cm}$ ($A = 16,6 \text{ cm}^2$) gilt für S :

$$(12) \quad S = N_A \cdot 2,4 \cdot 10^{-13} \text{ c/g}$$

und analog für einen Scheibendurchmesser von $10,5 \text{ cm}$ ($A = 86,5 \text{ cm}^2$):

$$(13) \quad S = N_A \cdot 4,63 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$$

Der ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm menschlicher Knochenasche beträgt nach Kapitel 2. 2 etwa $1 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$. Nimmt man an, daß sich das ^{226}Ra mit seinen vier nächsten Folgeprodukten im radioaktiven Gleichgewicht befindet, so erhält man für S einen Wert von $4 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$. Diese Aktivität entspricht bei einer Scheibe mit $4,6 \text{ cm}$ Durchmesser einer Impulsrate von $N_A = 0,17 \text{ Imp./Stunde}$, bei einer Scheibe mit $10,5 \text{ cm}$ Durchmesser $N_A = 0,87 \text{ Imp./Stunde}$. Bei einer Zählrate von $0,17 \text{ Impulsen/Stunde}$ sind jedoch mindestens 600 Stunden (25 Tage) Meßzeit notwendig, um diesen Wert mit einem mittleren statistischen Fehler von $\pm 10 \%$ zu sichern. Bei einer Zählrate $N_A = 0,87 \text{ Impulse/Stunde}$ ist zur Erreichung dieser Genauigkeit immer noch eine Meßzeit von etwa $4 - 5$ Tagen nötig.

Noch längere Meßzeiten sind für die Messung der ^{228}Th -Aktivität mit Hilfe der α -Koinzidenzanordnung notwendig. Nach den Gleichungen 4, 6 und 8 läßt sich die spezifische ^{228}Th -Aktivität in der folgenden Weise beschreiben (die Buchstaben R , R_0 , J , Z haben hier analoge Bedeutung wie in den früheren Gleichungen):

$$\begin{aligned}
 (14) \quad S' &= \frac{12 \cdot N_p}{R \cdot A \cdot \rho} \cdot \frac{1}{3,7 \cdot 10^{10} \cdot 3,6 \cdot 10^3} \\
 &= \frac{12 \cdot N_p}{R_0 \cdot Z^{2/3} \cdot A} \cdot \frac{1}{3,2 \cdot 10^{-4} \cdot 3,7 \cdot 10^{10} \cdot 3,6 \cdot 10^3} \\
 &= \frac{N_p}{R_0 \cdot Z^{2/3} \cdot A} \cdot 2,815 \cdot 10^{-10} \text{ c/g}
 \end{aligned}$$

Für $R_0 = 5,32 \text{ cm}$, $Z^{2/3} = 5,07$ und $A = 16,6 \text{ cm}^2$ (Durchmesser = 4,6 cm) ergibt sich S' zu :

$$(15) \quad S' = N_p \cdot 6,3 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$$

Für die größere Scheibe mit einem Durchmesser von 10,5 cm ($A = 86,5 \text{ cm}^2$) gilt analog :

$$(16) \quad S' = N_p \cdot 1,2 \cdot 10^{-13} \text{ c/g}$$

Die zu erwartende ^{228}Th -Aktivität der menschlichen Knochenasche liegt bei etwa $5 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$. Dem entspricht bei einer Zinksulfidscheibe mit einer Fläche von $A = 16,6 \text{ cm}^2$ eine Impulsrate von $8 \cdot 10^{-3}$ Koinzidenzen pro Stunde.

Die Koinzidenzmessungen werden bei der vorliegenden Apparatur mit einer Koinzidenzzeit von 0,32 sec durchgeführt. Da die Halbwertszeit von Th A jedoch 0,16 sec beträgt, geht ein Teil der vom Szintillator erfaßten Doppelzerfälle dem Nachweis verloren. Es werden nur 80 % der wahren Anzahl der Doppelimpulse gemessen. Dieser Meßwert muß daher auf 100 % korrigiert werden, um auch die Zerfälle zu berücksichtigen, die außerhalb des 0,32 sec Intervalls liegen (74). Andererseits entsprechen einer theoretisch berechneten Impulsrate von $8 \cdot 10^{-3}$ Koinzidenzen pro Stunde demnach auch nur etwa $6,4 \cdot 10^{-3}$ Doppelimpulse pro Stunde am Meßgerät.

Selbst nach einer Meßzeit von 40 Tagen hat man damit nur einen Meßeffect von 6,4 Koinzidenzen zu erwarten. Die Messungen, die mit Zinksulfidscheiben mit einem Durchmesser von 10,5 cm ($A = 86,5 \text{ cm}^2$) durchgeführt werden, lieferten nach 40 Tagen eine Gesamtzahl von etwa 32 Koinzidenzen. Um einen Meßwert zu erhalten, der einen mittleren statistischen Fehler von $\pm 10 \%$ für die Koinzidenzzählrate ergibt, wäre also eine Meßzeit von 120 Tagen nötig.

Wie man aus den Zahlenbeispielen in Kapitel 4. 3 ersieht, ist die Messung der natürlichen Radioaktivität menschlicher Knochenaschen mit Zinksulfidschirmen mit erheblichem Zeitaufwand verknüpft. Da sich außerdem zwischen Radon und ^{226}Ra sowie ^{228}Th und seinen Folgeprodukten zunächst ein radioaktives Gleichgewicht einstellen muß, kann jede Aschenprobe erst etwa 3 Wochen nach ihrer Einschließung in den Plexiglasbehälter gemessen werden. Um eine Verkürzung der Meßzeit zu erhalten, war eine Steigerung der Empfindlichkeit nötig. Von MUTH und OBERHAUSEN (77) wurde hierzu analog zu Untersuchungen von ROSHOLT (78) eine Mischmethode vorgeschlagen, bei der das zu messende Material mit der Szintillatorsubstanz ZnS (Ag) in einem bestimmten Verhältnis vermischt wird. Die Überprüfung dieser Methode vom Verfasser ergab einen Einfluß verschiedener Parameter auf die Zählrate. Die einzelnen Effekte werden im folgenden näher untersucht.

5. 1

Beschreibung der Meßanordnung

Zur Messung wurden Photomultiplier verwendet vom Typ Dumont 6363 (3" Größe) bei den Probenbehältern mit 5,2 cm Außendurchmesser und vom Typ Dumont 6364 bei den Probenbehältern mit 11,5 cm Außendurchmesser (Abbildung 6).

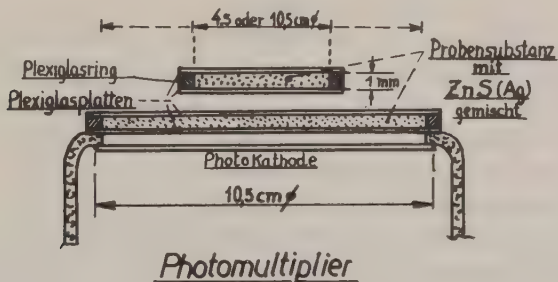


Abb. 6 Anordnung von Probenbehälter und Photomultiplier

Die Schaltung der Anordnung zur Bestimmung der gesamten α -strahlenden Radionuklide und der Thoriumkoinzidenzen ist in folgendem Blockschaltbild dargestellt (Abbildung 7).

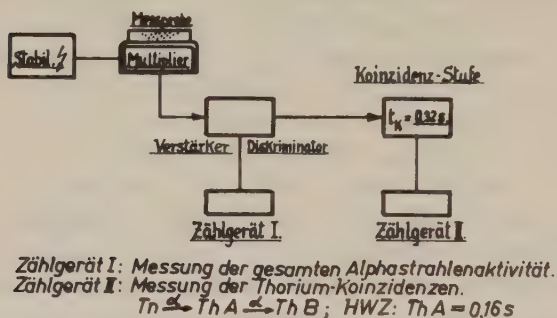


Abb. 7

Blockschaltbild

Die Hochspannung für den Multiplikator wurde einem hochstabilisierten Netzgerät der Firma ISOTOPE DEVELOPMENTS LIMITED Typ 532/D entnommen. Die Stabilität dieses Gerätes beträgt 0,02 % für 24 Stunden, und die Langzeitkonstanz ist weniger als 0,1 % pro 100 Stunden. Die Hochspannung selbst ist zwischen 0 und 3 KV kontinuierlich regelbar.

Die durch die α -Zerfälle in der Probe ausgelösten Szintillationen erzeugen an der Anode des Multiplikators ein Impulsspektrum, dessen maximale Amplituden in der Größenordnung von einigen 100 mV liegen. Die vom Multiplikator kommenden Impulse werden in einem übersteuerungsfesten Verstärker hundertfach verstärkt und anschließend einem Diskriminator zugeführt, mit dem eventuell auftretende Störimpulse sowie die von β - und γ -Strahlung herrührenden Signale unterdrückt werden. Alle den Diskriminator passierenden Impulse registriert ein Zählgerät. Parallel dazu werden mit Hilfe einer Koinzidenzstufe mit einer Koinzidenzzeit von 0,32 sec die innerhalb dieses Zeitintervalls auf-

tretenden Koinzidenzen gemessen. Um die Konstanz der gesamten Meßanordnung zu erhöhen, wurden alle Geräte mit elektronisch stabilisierter Netzspannung gespeist.

Als erstes wurde die Zählcharakteristik des Dumont Multipliers 6363 mit einem Zinksulfidschirm und einer Poloniumquelle aufgenommen. Man erhält von 850 Volt an aufwärts ein recht gutes Plateau mit einem Anstieg von 1 % pro 100 Volt. Für eine Mischung von 1 g ^{210}Po markiertem NaCl mit 1,7 g ZnS(Ag), die etwa 3 Wochen alt war, begann das Plateau erst bei etwa 1000 Volt und hatte einen leichten Anstieg von 3 % pro 100 Volt. Einen stärkeren Plateauanstieg erhält man mit Mischungen aus 1,7 g Zinksulfid und 1 g Knochenasche, die mit ^{210}Po bzw. ^{226}Ra versetzt waren. Der Anstieg beträgt hier etwa 18 % pro 100 Volt. Als Arbeitspunkt wurde ein Wert von 1030 V gewählt. Bei dieser Stellung konnte bei einem Diskriminatorpegel von 12 V keine β -Strahlung mehr nachgewiesen werden. Die Nachweisgrenze für β -Strahlung wurde sowohl durch Messungen an reinen ^{90}Sr - + ^{90}Y -Proben (^{90}Sr , $E_{\text{max}} = 0,54 \text{ MeV}$; ^{90}Y , $E_{\text{max}} = 2,27 \text{ MeV}$) mit Hilfe von Zinksulfidschirmen überprüft als auch durch Messungen an Mischproben aus 1 g NaCl und 1,7 g ZnS(Ag), die mit ^{90}Sr + ^{90}Y oder ^{14}C ($E_{\text{max}} = 0,158 \text{ MeV}$) markiert waren.

Um mechanische Erschütterungen vom Meßkopf fernzuhalten, wurde der Multiplier in einer speziellen Halterung aufgehängt und zusätzlich in Schaumgummi eingebettet. Mit diesen Maßnahmen konnte der elektrische Nulleffekt auf ein Minimum reduziert werden. Er lag für Messungen mit dem 3" Multiplier 6363 bei 0,5 Impulsen/Stunde und während der Experimente mit dem 5" Multiplier 6364 bei 4 Impulsen/Stunde. (Der Arbeitspunkt für diesen Multiplier vom Typ 6364 liegt bei 1145 V). Im Koinzidenzteil war der elektrische Nulleffekt für beide Multipliertypen gleich Null.

5. 2 Chemische Präparation der für die Misch- methode verwendeten Knochenaschen

Die Knochen werden bei 600°C im Ofen verascht. Dabei ergeben sich verschiedenfarbige Aschen, die außerdem noch unterschiedlich hart sind. Um möglichst gleichmäßige Ausgangsbedingungen zu erhalten, wurden diese Aschen in einem Porzellanmörser zer-

rieben und dann jeweils in einer Menge von drei Gramm in 30 ml 10%iger HNO_3 und 6 ml 2n HCl gelöst und unter einem Ultrarotstrahler eingedampft. Daraufhin wurde diese Asche mit 10 ml 10%iger H_2SO_4 gleichmäßig durchfeuchtet und wieder bis zur Trockene eingedampft. Nach einem anschließenden 15-stündigen Trockenprozeß bei 400°C im Ofen erhielt man eine gleichmäßige, helle und trockene Aschensubstanz. Werden für die Messung größere Aschenmengen benötigt, so sind die Säuremengen entsprechend den oben angegebenen Verhältnissen zu erhöhen.

Dieses hier beschriebene Verfahren hat sich nach Abdampfversuchen mit HCl , HClO_4 , HNO_3 und H_2SO_4 in verschiedenen Kombinationen als das beste bewährt. Die verschiedenen Abdampfversuche führten zu folgenden Resultaten :

1. Die mit HClO_4 gelöste und unter dem Ultrarotstrahler eingedampfte Knochenasche wird zwar hell, behält aber eine klebrige Konsistenz.
2. Mit HCl und HNO_3 abgerauchte Knochenasche ergibt eine helle Substanz, die jedoch stark hygroskopisch ist.
3. Mit HCl und HNO_3 abgerauchte Knochenasche, die anschließend im Ofen bei 500°C getrocknet wurde, führt zu einer trockenen Substanz, die braun bis violett gefärbt ist.
4. Mit HCl , HNO_3 und H_2SO_4 abgerauchte Knochenasche ergibt eine gleichmäßige, weiße Substanz mit allerdings schwach hygroskopischen Eigenschaften.
5. Mit HCl , HNO_3 und H_2SO_4 abgerauchte Knochenasche, die anschließend im Ofen bei 400°C getrocknet wurde, liefert eine sehr helle und trockene Substanz.

5. 3 Messung des Remissionsgrades der
 chemisch vorbehandelten Aschen

Um für die folgenden Experimente eine Vergleichsmöglichkeit in Bezug auf die optische Helligkeit der Aschenproben zu haben, wurde mit Hilfe eines lichtelektrischen Remissionsphotometers von Zeiß der Remissionsgrad der Proben gemessen (79). Es handelt sich dabei um eine Relativmessung, die den jeweiligen Remissionsgrad der Probe, bezogen auf den gleich 100 Prozent gesetzten

Remissionsgrad von Magnesiumoxyd, liefert. Die Aschenproben wurden dazu in die gleichen Plexiglasschälchen eingepresst, die auch zur Messung mit dem Photomultiplier Verwendung fanden (Abbildung 6). Diese konnten mit Hilfe eines Zwischenrings in definiertem Abstand von der Meßblende einjustiert werden. Der Abstand von der Meßblende zur Probenoberfläche betrug 1 mm. Um Abweichungen zu vermeiden, war beim Anpressen der Probe auf eine glatte, gleichmäßige Oberflächenbeschaffenheit zu achten. Untersuchungen ergaben, daß bei aufgelockerter Probenoberfläche der Fehler der Remissionsmessung bis zu 0,6 % betragen kann. Bei gleichmäßigen Ausgangsbedingungen ist der Fehler jedoch nicht größer als $\pm 0,2$ %. Durch vergleichende Remissionsmessungen an zwei Proben bei verschiedenen Wellenlängen wurden die Wellenlängen bzw. Filter bestimmt, bei denen sich die Remissionswerte zwischen den beiden Proben am stärksten unterscheiden (Tabelle 14). Die Messungen wurden mit zwei Proben durchgeführt, die visuell gerade noch unterschieden werden können. Als optimale Wellenlängen für die Messungen ergaben sich die Wellenlängen 4900 Å und 4600 Å, die durch die Filter R 49 und R 46 des Geräts erzeugt werden (Empfindlichkeitsbereich des Multipliers, Maximum der spektralen Intensitätsverteilung der Lumineszenzstrahlung des Zinksulfids bei 4500 Å), (Tabelle 14).

Filter - Bezeichnung	Remissionsgrad der Probe 1 [%]	Remissionsgrad der Probe 2 [%]	Differenz
R 68	91,10	89,75	1,35
R 62	91,28	89,78	1,50
R 57	91,05	89,22	1,83
R 53	91,25	89,35	1,90
R 49	90,90	88,40	2,50
R 46	90,60	88,10	2,50
R 42	88,37	86,28	2,09

Tabelle 14

Remissionsgrad in Abhängigkeit
von der Wellenlänge für zwei
verschiedene Knochenaschen

Messungen an verschiedenen Mischungen von chemisch vorbehandelten Knochenaschen und Zinksulfid zeigten, daß bei einem Mischungsverhältnis von 1,8 g Knochenasche zu 0,9 g Zinksulfid keine wesentlichen Unterschiede zwischen den Differenzen der Remissionswerte zweier Proben bestehen, die sowohl für ein $\lambda = 4900 \text{ \AA}$ als auch für ein $\lambda = 4600 \text{ \AA}$ ermittelt wurden. Für ein Mischungsverhältnis von 1,0 g Knochenasche zu 1,7 g Zinksulfid stimmen die Differenzen der Remissionswerte zwischen den einzelnen Proben für die beiden Wellenlängen $\lambda = 4900 \text{ \AA}$ oder $\lambda = 4600 \text{ \AA}$ innerhalb von $\pm 0,1 \%$ überein. Zur Kontrolle wurde trotzdem der Remissionsgrad der Proben in den meisten Fällen sowohl bei $\lambda = 4900 \text{ \AA}$ (Filter R 49) als auch bei $\lambda = 4600 \text{ \AA}$ (Filter R 46) gemessen.

5. 4 Bestimmung der Zählausbeute bei der Vermischung des Knochenaschenpulvers mit den radioaktiven Substanzen

Die Zählausbeute wurde mit einem ^{210}Po -Knochen-Präparat bekannter Aktivität für eine Mischung von 1,8 g chemisch vorbehandelter Knochenasche und 0,9 g Zinksulfid sowie 1,0 g chemisch präparierter Knochenasche und 1,7 g Zinksulfid bestimmt. Hierzu wurden die nach der zuvor beschriebenen Methode gebleichten Knochenaschen in einem Mörser 1 min lang leicht zerrieben, sodann mit einer eingestellten ^{210}Po -Lösung bekannter Aktivität getränkt und über Nacht 15 Stunden lang bei 80°C getrocknet. Im Gegensatz zu der später noch zu beschreibenden Präparationsmethode, bei der die radioaktiven Atome chemisch direkt in die Asche eingebaut wurden, lagern sich hier die Polonium-Atome an die Oberfläche der Knochenpartikel an. Vor der Mischung dieses Präparates mit Zinksulfid in den oben angegebenen Proportionen wurde die getrocknete mit ^{210}Po markierte Knochenasche nochmals ca. 3 min lang im Mörser zerrieben. Das Verhältnis von gemessener Impulsrate zur Aktivität der Probe gibt die Zählausbeute an, mit der die Zerfälle registriert werden. Bei diesen Messungen zeigte sich ein Anstieg der Zählrate innerhalb der ersten Tage (Tabelle 15).

Zur Aufklärung dieses Anstiegs wurden Probenmischungen von mit ^{210}Po versetzter Knochenasche und Zinksulfid in einem 100 ml Becherglas mit Salzsäure gut durchfeuchtet. Nach einer Trocken-

zeit von ca. 10 min bei 80° C erhielt man ein Präparat, das noch leicht feucht, aber noch nicht zu pulvrig war. Dieses wurde dann anschließend im Plexiglas-Probenhalter eingeschlossen und gemessen.

Mischungs - Verhältnis Kn : ZnS(Ag)	Herstellungs - Termin	Tage der Messung	Zähl - Ausbeute %
1,8 : 0,9	26.10.61.	26.10.61.	29
		27.10.61.	33
		30.10.61.	34
		1.11.61.	38
		13.11.61.	37
1,8 : 0,9	26.10.61.	26.10.61.	20
		27.10.61.	22
		30.10.61.	27
		1.11.61.	29
		13.11.61.	32
1,8 : 0,9	26.10.61.	26.10.61.	21
		30.10.61.	26
		1.11.61.	27
		13.11.61.	30
1,0 : 1,7	26.10.61.	26.10.61.	42
		1.11.61.	54
		13.11.61.	53
1,0 : 1,7	26.10.61.	26.10.61.	48
		27.10.61.	49
		30.10.61.	54
		1.11.61.	55
		13.11.61.	53
1,0 : 1,7	26.10.61.	26.10.61.	40
		30.10.61.	48
		1.11.61.	50
		13.11.61.	49

Tabelle 15 Zähl- ausbeuten für mit Knochen-
asche vermisches ^{210}Po

Die Messungen sofort nach der Präparation lieferten eine Zähl- ausbeute, die in den meisten Fällen höher lag als die Zähl- aus- beute, welche sich aus den Anfangsmessungen der nicht mit Salz- säure behandelten Mischungen ergab (vergleiche Tabelle 15 mit Tabelle 16). Außerdem findet auch bei diesen Proben ein Anstieg der Zählrate innerhalb der ersten Tage statt. Etwa 8 Tage nach der Präparation erhält man eine annähernd konstante Zähl- ausbeute (Tabelle 16).

Mischungs- Verhältnis Kn : ZnS(Ag)	Präparation	Herstellungs- Termin	Tage der Messung	Zähl - Ausbeute %
1,0 : 1,7	2ml 2n HCl, 80°C	12.11.61.	13.11.61. 14.11.61. 1.12.61.	63. 67 71
1,0 : 1,7	3ml 2n HCl, 80°C feuchte Probe	14.11.61.	14.11.61. 20.11.61. 29.11.61.	54 60 63
1,0 : 1,7	3ml 2n HCl	14.11.61.	14.11.61. 20.11.61.	57 66
1,0 : 1,7	2ml 2n HCl feuchte Probe	16.11.61.	16.11.61. 18.11.61. 6. 1.62.	64 72 70
1,8 : 0,9	1ml 1n HCl 25 min bei 115°C feuchte Probe	23.11.61.	23.11.61. 24.11.61. 28.11.61.	26 29 51
1,8 : 0,9	1ml 2n HCl 25 min bei 115°C	23.11.61.	23.11.61. 27.11.61.	46 53
1,8 : 0,9	1ml 1n HCl 30 min bei 115°C feuchte Probe	23.11.61.	23.11.61. 28.11.61. 6. 1.62.	24 39 51
1,8 : 0,9	1ml 1n HCl 23 min bei 115°C	24.11.61.	24.11.61. 28.11.61.	53 62
1,8 : 0,9	1ml H ₂ O 10 min bei 115°C	24.11.61.	24.11.61. 28.11.61.	58 60

Tabelle 16 ²¹⁰Po-Zählausbeuten für mit Salzsäure behandelte Mischungen von Knochenasche und ZnS(Ag)

Vergleicht man die zu diesem Zeitpunkt ermittelten Ausbeuten mit den Anfangswerten, die für nicht mit Salzsäure getränkte Mischungen errechnet wurden (Tabelle 15), so zeigt sich, daß für das Mischungsverhältnis 1,0 g Knochenasche zu 1,7 g Zinksulfid die Zählausbeuten von etwa 40 % auf 70 % gestiegen sind. Für die Mischung 1,8 g Knochenasche und 0,9 g Zinksulfid steigt die Zählausbeute von etwa 24 % auf 55 %, also auf mehr als das Doppelte an.

Als Ergebnis dieser Untersuchung zeigt sich, daß bei Anwesenheit einer bestimmten Konzentration an Cl-Ionen die Ausbeute für beide Mischungsverhältnisse beachtlich höher war. Bei der letzten Probe in Tabelle 16 konnte eine Ausbeuteerhöhung bereits durch H₂O-Zugabe erzielt werden. Offenbar reicht der in der Probe durch die vorhergehende Zugabe der ²¹⁰Po-Lösung vorhandene Chloridanteil aus, um zusammen mit dem Wasser die Erhöhung der Zählrate zu bewirken.

Analoge Untersuchungen mit den natürlich radioaktiven Nukliden ²²⁸Th und ²²⁶Ra ergeben dagegen bei der Behandlung der Mischungen mit Säuren keine derartigen Erhöhungen der Zählraten. Man erhält hier Werte, die durchaus vergleichbar sind mit den später darzustellenden Resultaten, bei denen ²¹⁰Po, ²²⁶Ra oder ²²⁸Th in die Aschen eingebaut worden war (Kapitel 5. 7).

Für an die Knochenpartikel oberflächlich angelagertes ²²⁶Ra, das sich im radioaktiven Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten befand, ergeben sich bei Mischungen von 1,0 g Knochenasche mit 1,7 g Zinksulfid Zählausbeuten von etwa 50 - 55 %. Unter denselben Bedingungen erhält man für ²²⁸Th und seine Folgeprodukte Zählausbeuten von etwa 45 - 50 %. Mischungen von 1,8 g Knochenasche mit 0,9 g Zinksulfid zeigen unter den gleichen Verhältnissen für ²²⁶Ra eine Zählausbeute von etwa 25 % und für ²²⁸Th eine von etwa 22 - 24 %. Der Remissionsgrad der Knochenaschen war für alle Versuche der gleiche, er betrug etwa R = 93,5 %.

5. 5 Zur Klärung des Zählratenanstieges bei Messungen von ²¹⁰Po-Aktivitäten mit der Mischmethode

Es war als nächstes die Frage zu untersuchen, ob bei der Zugabe von Salzsäure auf mit ²¹⁰Po gespickte Knochenaschen-Zinksulfid-Mischungen bevorzugte Ablagerungen von Polonium an der Plexiglas-scheibe des Probenbehälters stattfinden und ob dadurch Zählraten-erhöhungen bedingt sein können. Nach zwei- bis dreimaligem Um- wechseln von ²¹⁰Po-Mischproben, deren Zählrate angestiegen war, in neue Plexiglasbehälter konnte keine Abnahme der Zählrate ge- funden werden. Damit ist eine Anlagerung von ²¹⁰Po an das Plexi- glas mit Sicherheit auszuschließen.

Die Möglichkeit einer Zählratenerhöhung durch Chemolumineszenzprozesse des Zinksulfids infolge der Behandlung mit Salzsäure wurde ebenfalls überprüft. Hierzu wurden sowohl Mischungen von gebleichten Knochenaschen mit Zinksulfid als auch Zinksulfid allein nach Zusatz von Salzsäure bei 80° C eingetrocknet und einige Tage später gemessen. Die Aktivität entsprach der Eigenaktivität der Knochenasche und des Zinksulfids bzw. des Szintillators alleine. Die Behandlung des Zinksulfids mit Salzsäure verursacht also keine Zählratenerhöhung.

Zinksulfidschirme, die mit diesem mit Salzsäure vorbehandelten Zinksulfid hergestellt worden waren, zeigten bei einer Überprüfung ihrer Zählausbeute, daß durch den chemischen Eingriff der Szintillator noch nichts von seinen Szintillationseigenschaften eingebüßt hatte. Die gemessenen Zählraten entsprachen genau den theoretisch zu erwartenden Werten.

Die Untersuchung einer etwaigen Eigenszintillation des Knochenmaterials ohne Zinksulfid unter den gleichen Bedingungen, wie sie in einer feuchten Probe vorliegen, ergab auch bei hohen ^{210}Po -Aktivitäten keinen Effekt.

Weitere Untersuchungen zu dem Problem des Zählratenanstiegs bei Polonium wurden mit anderen ^{210}Po -aktivierten Substanzen wie NaCl , Bergkristallstaub, Glas und Porzellan durchgeführt. Mit ^{210}Po aktivierte NaCl -Proben zeigten einen deutlichen Zählratenanstieg bereits in trockenem Zustand ohne besondere Zugabe von Salzsäure. 1 g NaCl mit 1 ml ^{210}Po -Lösung (7500 Impulse/Minute) versetzt, getrocknet und anschließend mit 10 mg Zinksulfid gemischt, ergab 250 - 350 Impulse/Minute. Nach einem Tag trat bereits eine Verdoppelung der Zählausbeute auf. Die Zählrate stieg auf 500 Impulse/Minute an. Ein ähnlicher Zählratenanstieg konnte auch bei Mischungen von 1 g NaCl mit kleineren Mengen Zinksulfid von 1, 2 oder 5 mg beobachtet werden.

Mit ^{210}Po -Lösung versetztes NaCl , das erst nach 2 Tagen mit 10 mg $\text{ZnS}(\text{Ag})$ gemischt wurde, zeigte einen schnelleren Anstieg, der bereits nach einer Stunde zu einer Zählrate von 560 Impulsen/Minute führte und der am nächsten Tag eine Zählrate von 1320 Impulsen/Minute ergab. Versuche mit ^{226}Ra - und ^{228}Th -Lösungen

führten bei gleichem experimentellen Vorgehen zu keinem Anstieg der Zählraten.

Auch Bergkristall und Glaspulver, die jeweils in Mengen von 1 g mit derselben ^{210}Po -Lösung getränkt und in leicht feuchtem Zustand mit 10 mg $\text{ZnS}(\text{Ag})$ gemischt wurden, zeigten einen Anstieg der Zählrate. (Die Bergkristallprobe stieg z.B. innerhalb von einer Stunde von 1855 Impulsen/Minute auf 2378 Impulse/Minute an.) Glas zeigt die gleiche Anstiegstendenz. Mißt man dieselben Proben in trockenem Zustand, so zeigt sich bei der gleichen Ausgangsaktivität an ^{210}Po eine kleinere Zählrate als bei den Messungen in feuchtem Zustand von 124 Impulsen/Minute, die allerdings die gleiche Anstiegstendenz aufweist (170 Impulse/Minute nach einer Stunde). Während die Zählraten der trockenen Proben nach Beendigung des Anstiegs unverändert blieben, wurde bei den feuchten Bergkristall- oder Glasproben ein deutliches Absinken der Zählraten beobachtet.

Die Erklärung des Ansteigens der Zählraten bei den verschiedenen ^{210}Po -Probenmischungen kann einmal durch Annahme einer bevorzugten Diffusion der ^{210}Po -Atome im Festkörper erfolgen. Nimmt man eine ungünstige Verteilung der ^{210}Po -Atome innerhalb der Mischung gegenüber den Szintillatorzentren $\text{ZnS}(\text{Ag})$ an, so kann diese durch eine Diffusion der ^{210}Po -Atome verbessert werden.

Bei einer bevorzugten Adsorption der ^{210}Po -Atome an den Zinksulfidkristallen findet dann eine gerichtete Diffusion statt. Eine ^{210}Po -Diffusion innerhalb eines Festkörpers wurde erstmals von MONTEL nachgewiesen. MONTEL beobachtete eine Diffusion des ^{210}Po innerhalb eines Bleikristalles bei Anwesenheit von Spuren von Säuren (68) (69).

Von ROSHOLT wurde eine bevorzugte Adsorption der ^{210}Po -Atome an das Zinksulfid in HCl -Lösungen gefunden (78). Er stellte fest, daß 150 mg Zinksulfid in 50 ml einer Lösung von pH 2 - 3 mehr als 99 % der Polonium-Atome adsorbieren.

Anknüpfend an diese Versuche von ROSHOLT könnte die in der vorliegenden Arbeit gefundene Poloniumdiffusion innerhalb der Mischungen von Knochenasche, NaCl oder Bergkristall mit $\text{ZnS}(\text{Ag})$

unter der Annahme eines dünnen Säurefilms aus Salzsäure, welcher die Kristalle umgibt, erklärt werden. Durch diesen Säurefilm wäre dann eine Diffusion von Polonium-Atomen zum ZnS-Kristall hin denkbar.

Eine Erklärung für eine Anlagerung des ^{210}Po -Atoms an das Zinksulfid ist möglich unter Zugrundelegung einer chemischen Fällungsreaktion. Die in der Mischung vorhandenen HCl-Moleküle können mit dem Zinksulfid in der folgenden Weise reagieren :

$\text{ZnS} + 2 \text{HCl} \rightleftharpoons \text{ZnCl}_2 + \text{H}_2\text{S}$. Durch diese Reaktion wird in der Nähe der ZnS-Kristalle eine sehr hohe Konzentration an S^{--} -Ionen aufgebaut. Da die Affinität des Sulfids zu Polonium größer ist als zu Zinksulfid, wird in einem Zinksulfid-Milieu, das mit H_2S umgeben ist, bevorzugt Poloniumsulfid ausfallen. Die hohe S^{--} -Konzentration in der Nähe der Zinksulfid-Kristalle führt deshalb zur Ausfällung der in der Nähe befindlichen ^{210}Po -Atome als Poloniumsulfid und in der Folge zu deren adsorptiven Anlagerung an die Zinksulfid-Kristalle.

Eine zweite Erklärungsmöglichkeit wäre in einer bevorzugten Anlagerung des Polonium-Atoms an metallisches Zink infolge elektrochemischer Wechselwirkung zu sehen. Einige Autoren fanden so z.B. in ZnS(Ag) einen bestimmten Anteil an metallischem Zink, der bei der Herstellung entsteht (80). Diese letzte Hypothese setzt allerdings voraus, daß diese vorliegenden Zink-Kristalle bei der Behandlung mit Salzsäure nicht vollständig in ZnCl_2 umgewandelt werden.

Die angedeuteten Erklärungsmöglichkeiten haben gemeinsam, daß ein Diffusionsgefälle des ^{210}Po -Atoms zum Zinksulfid hin entsteht und dadurch eine Anreicherung der ^{210}Po -Atome in der Nähe der ZnS-Kristalle auftritt. Der Anstieg der Zählrate im Laufe der Zeit ist damit eine Folge der geringeren Selbstabsorption der α -Strahlung.

In gleicher Weise könnte hiermit auch das Absinken der ^{210}Po -Zählrate mit der Zeit bei leicht feuchten Glasproben verstanden werden. Da relativ mehr Wasser als Salzsäure aus den Proben verdunstet, erhöht sich die Säurekonzentration in der Probe bis zum

Einstellen des Salzsäure-Gleichgewichtszustands. Diese Erhöhung des pH Wertes kann einmal dazu führen, daß sich die Bindung zwischen Polonium und Zinksulfid wieder auflöst und das zum anderen Poloniumsulfid und Zinksulfid dissoziieren. Das freigesetzte Polonium-Atom befindet sich relativ zum ZnS-Kristall nicht mehr in einer fixierten Lage, sondern ist in gewissen Grenzen frei beweglich und wird demzufolge eine andere Verteilung in der Mischung annehmen. Als deren Folge tritt wegen der größeren Selbstabsorption der α -Strahlen wieder ein Abfall der Zählrate auf. Eine Stütze für diese Annahme bildet die Tatsache, daß bei trockenen Glasproben von Anfang an eine geringere Zählrate zu beobachten war als bei feuchten Proben. In Probenmischungen mit NaCl bewirkt eine Verdunstung von H_2O und HCl dagegen eine Verminderung der H^+ Ionen-Konzentration und eine Erhöhung der Konzentration nichtdissoziierter HCl. Die Po - ZnS Verbindung wird hier also nur mit einer sehr viel geringeren Wahrscheinlichkeit gelöst. Da damit aber das Polonium-Atom relativ zum ZnS-Kristall seine Lage beibehält, ist in Übereinstimmung mit den Versuchsergebnissen bei ^{210}Po -getränkten trockenen NaCl-Proben keine erneute Abnahme der Zählrate zu erwarten.

Zur Veranschaulichung der in der Probe vorliegenden Verteilungsverhältnisse soll das folgende Zahlenbeispiel dienen, das sich auf eine Mischung von 1 g NaCl und 10 mg ZnS(Ag) bezieht. Aus den Molekulargewichten und den Grammengen von NaCl und ZnS(Ag) ergibt sich für eine Mischung von 1 g NaCl und 10 mg ZnS(Ag) ein Verhältnis von NaCl- zu ZnS-Molekülen von 165 zu 1, d.h. auf 165 Moleküle NaCl kommt nur 1 Molekül ZnS. In der Ebene heißt dies, daß im Durchschnitt erst nach 5,5 ($\sqrt[3]{165}$) Molekülen NaCl in einer Richtung wieder mit einem ZnS-Molekül zu rechnen ist. Bei einer α -Teilchen-Reichweite von 40 μ und einem Moleküldurchmesser von 10^{-6} mm werden etwa 4000 Moleküle von jedem α -Teilchen passiert. In einem Würfel von 40 μ Kantenlänge sind bei einer ^{210}Po -Aktivität von $3,4 \cdot 10^{-9}\text{c}$ etwa 280 radioaktive Atome vorhanden. Der gleiche Würfel enthält für ein Mischungsverhältnis von 1 g NaCl zu 10 mg ZnS jedoch $77 \cdot 10^{11}$ Atome ZnS bzw. $128 \cdot 10^{13}$ Atome NaCl. Die Anzahl der ^{210}Po -Atome in der Mischung ist somit sehr gering gegenüber der Anzahl der Atome der Szintillatorsubstanz, so daß eine bevorzugte Verteilung der Polonium-Atome in

der Umgebung der ZnS-Kristalle durchaus eine Zählratenerhöhung zur Folge haben kann.

Zur Überprüfung der Frage, ob die ^{210}Po -Atome sich wirklich an die ZnS-Kristalle anlagern, wurde ZnS mit ^{210}Po übergossen, getrocknet und mit inaktiver, chemisch vorbehandelter Knochenasche vermischt. Für ein Mischungsverhältnis von 1,0 g Asche zu 1,7 g ^{210}Po aktiviertem ZnS(Ag) ergaben sich Zählausbeuten von etwa 75 - 80 %. Diese Ausbeute ist hier noch etwas höher als der entsprechende Wert, der an mit Salzsäure versetzten ^{210}Po aktivierten Knochenaschen gefunden wurde (Tabelle 16). Für ein Mischungsverhältnis von 1,8 g Knochenasche zu 0,9 g ZnS(Ag) ergab sich eine Zählausbeute von 65 - 70 %.

Übergießt man die gleiche Menge ZnS(Ag) mit ^{228}Th -Lösung und vermischt dieses Präparat wiederum mit inaktiver Knochenasche, so ergeben sich Ausbeutewerte, die innerhalb der Fehlerbreite mit den ^{210}Po -Ausbeuten übereinstimmen.

Für Mischungen aus 1,0 g Asche und 1,7 g ZnS(Ag) ergeben sich so 90 % Zählausbeute für die gesamte α -Strahlung und etwa 46 % Zählausbeute für die Koinzidenzmessungen des ThA -Doppelzerfalls, bei 1,8 g Knochenasche und 0,9 g ZnS(Ag) hingegen für die gesamte α -Strahlung 55 - 60 % und 17 % für die Messung der Doppelimpulse.

Eine Mischung von 1,8 g Knochenasche und 2,5 g ZnS(Ag) hat für die Gesamtanzahl der Einzelimpulse eine Zählausbeute von 75 - 80 % und für die Koinzidenzen eine Ausbeute von etwa 34 %. Da die späteren Messungen auch mit größeren Probenbehältern durchgeführt werden, erfolgte die Ausbeutebestimmung für an ZnS(Ag) angelagerte radioaktive Atome auch für diese größeren Probenbehälter, die die ganze Photokathode des Multipliers bedecken (siehe Kapitel 5. 1 und Abb. 6). Eine Aktivierung des ZnS(Ag) mit ^{210}Po ergab für ein Mischungsverhältnis von 1,0 : 1,7 eine Zählausbeute von 70 - 75 % und für ein Mischungsverhältnis von 1,8 : 0,9 eine Ausbeute von 55 %.

Messungen mit ^{228}Th lieferten für den gesamten α -Anteil bei einem Verhältnis von 1,0 : 1,7 eine Zählausbeute von 83 %. Die Ausbeute für die Radiothorkoinzidenzen beträgt 40 %. Für das Verhältnis 1,8 : 0,9 ergibt sich eine Zählausbeute zwischen 45 und 50 % für die gesamte α -Strahlung und ein Wert von 15 % für die

Koinzidenzen. Bei einem Mischungsverhältnis von 1,8 g Knochenasche zu 2,5 g ZnS(Ag) erhält man für die Einzelimpulse der gesamten α -Strahlung des ^{228}Th mit seinen Folgeprodukten eine Zählausbeute von etwa 68 - 72 %, und für die Koinzidenzen ist eine Zählausbeute von etwa 29 % gefunden worden.

Die für große Präparatebehälter ermittelten Zählausbeuten sind kleiner als die Zählausbeuten, die für kleine Probenbehälter gefunden wurden. Diese Verringerung der Ausbeute ist durch die Verschlechterung der Geometrie zwischen Probenfläche und Photokathode bedingt.

5. 6 Berücksichtigung der Eigenaktivität des ZnS(Ag)

Drei Gramm Zinksulfid mit ^{228}Th -Lösung übergossen, getrocknet und ohne weitere Mischung mit Knochensubstanz allein gemessen ergeben für die gesamte α -Strahlung des Thoriums eine Ausbeute von 75 % und für den Koinzidenzanteil einen Wirkungsgrad von 40 %. Diese Ausbeutewerte wurden auch der Berechnung der Eigen- α -Aktivität des ZnS(Ag) aus dem an einer Menge von 3 g ZnS(Ag) gemessenen Nulleffekt zugrunde gelegt. Es ergab sich dabei eine Eigenaktivität von 1,64 Imp./h g = $1,2 \cdot 10^{-14}$ c/g in Bezug auf die gesamte α -Strahlung und 0,13 Koinz./h g = $1 \cdot 10^{-15}$ c/g in Bezug auf die Koinzidenzen. Aus den in Kapitel 5. 5 angegebenen Zähl- ausbeuten für die nach der Mischmethode hergestellten Proben läßt sich der Zählratenanteil infolge der Eigenverseuchung des ZnS(Ag) bei der Messung dieser Proben berechnen. Es ist dabei jeweils die Zählausbeute verwendet worden, die man erhält, wenn das ZnS(Ag) mit dem radioaktiven Nuklid markiert wird. Auch für die Scheiben mit einem Außendurchmesser von etwa 7 cm gelten die Zählausbeuten, die für Probenbehälter ermittelt wurden, welche die ganze Fläche der Photokathode bedecken, da die Messungen dieser Proben auf dem Multiplier vom Typ Dumont 6363 durchgeführt wurden. Die Tabelle 17 gibt den Nulleffektwert des ZnS(Ag) für verschiedene Mischungsverhältnisse und Probengrößen an, der dann von den Meßergebnissen zu subtrahieren ist.

Mischungsverhältnis [g]	Bezeichnung der Zählraten	Größe der Proben- behälter Außendurchmesser [cm]	Zur Berechnung verwendete Zählabschneiden [%]	Gezählter Anteil der Eigenaktivität des $ZnS(Ag)$ [Imp./h]
1,8 : 0,9	ges.- α -impuls- rate	11,5 7,2 5,2	45 45 55	3,5 1,3 0,8
	Koinzidenz- rate	11,5 7,2 5,2	15 15 17	0,09 0,04 0,02
1,0 : 1,7	ges.- α -impuls- rate	11,5 7,2 5,2	80 60 90	11,5 4,4 2,5
	Koinzidenz- rate	11,5 7,2 5,2	40 40 46	0,40 0,16 0,10
1,8 : 2,5	ges.- α -impuls- rate	11,5 7,2 5,2	68 68 75	14,7 5,6 3,7
	Koinzidenz- rate	11,5 7,2 5,2	29 29 34	0,49 0,19 0,11

Tabelle 17 Zählrate der Eigenaktivität des $ZnS(Ag)$ bei verschiedenen Mischungsverhältnissen

5. 7 Bestimmung der Zählausbeute bei chemischem Einbau der radioaktiven Nuklide in die Knochenasche

Die in Kapitel 5. 4 und 5. 5 beschriebenen Untersuchungen zeigen, daß bei der Bestimmung des Kalibrierungsfaktors für die Messungen mit der Mischmethode darauf geachtet werden muß, unter welchen Bedingungen das zu messende radioaktive Nuklid vorliegt. Die Zählausbeuten sind z.B. für Polonium, je nachdem ob sich das radioaktive Polonium an der Oberfläche der Knochenkristalle befindet oder ob es sich um in den Knochenkristall eingebaute ^{210}Po -Atome handelt, wesentlich voneinander verschieden.

Da es das Ziel der folgenden Experimente ist, die gesamte α - Aktivität von menschlichen Knochenaschen zu ermitteln, mußten bei der Herstellung der zur Kalibrierung verwendeten Knochenaschen in Bezug auf die zu bestimmenden radioaktiven Nuklide möglichst weitgehend die Verhältnisse in der Knochenasche imitiert werden.

Aus diesem Grund wurden für diese Präparate jeweils 3 g Knochenasche mit der entsprechenden radioaktiven Lösung versetzt, dann in 50 ml HNO_3 gelöst und eingedampft. Die Substanz wurde anschließend mit 10 ml 10%iger H_2SO_4 wieder aufgenommen, zur Trockene eingedampft und die Asche bei 400°C 15 Stunden lang im Ofen getrocknet. Mit Hilfe dieses chemischen Verfahrens wurden die jeweiligen radioaktiven Nuklide in die Knochenaschen eingebaut, während bei der vorher beschriebenen Präparationsmethode (Kapitel 5. 4 und 5. 5) die radioaktiven Nuklide nur oberflächlich an die Knochenpartikel angelagert waren.

Bei der Kalibrierung der mit Polonium versetzten Aschen war außerdem zu prüfen, inwieweit bei dieser beschriebenen Aufbereitungsmethode ein Verlust an ^{210}Po eintritt. Die experimentelle Untersuchung dieser Frage ergab, daß bei dem Verfahren kein nennenswerter Anteil an Polonium verloren geht. In gleicher Weise sind dann auch die später zu messenden normalen, nicht künstlich aktivierten menschlichen Knochenaschen behandelt worden. Sie durchliefen vor der Messung ihres Gehaltes an natürlich radioaktiven Nukliden den bei der Kalibrierung benutzten Präparationsprozeß (siehe Kapitel 6).

5. 7. 1 Zählrate und Zählausbeute in Abhängigkeit von
der Korngröße des Szintillators ZnS(Ag) und
der Knochenasche

Um den Einfluß der Korngröße der Knochenasche auf die Zählrate zu untersuchen, wurden chemisch vorbehandelte Knochenaschenproben gleichen Remissionsgrades (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$), in die vorer ^{210}Po in der auf Seite 63 beschriebenen Weise eingebaut worden war, verschieden lange zerrieben und mit dem Szintillator ZnS(Ag) vermischt. Die Proben wurden anschließend in Plexiglasbehältern von 4,5 cm Innendurchmesser und 1 mm Höhe luftdicht eingeschlossen und die Szintillationen mit dem Photomultiplier gemessen (Abb.6). Die Abbildung 8 gibt die Abhängigkeit der Zählrate und der Zählausbeute von der Reibzeit für die drei verschiedenen Mischungsverhältnisse von 1,0 g Knochenasche zu 1,7 g ZnS(Ag), 1,8 g Knochenasche zu 0,9 g ZnS(Ag) und 1,8 g Knochenasche zu 2,5 g ZnS(Ag) wieder. Für die Mischung 1,0 g chemisch vorbehandelte Knochenasche und 1,7 g ZnS(Ag) ist die Zählrate für größere Reibzeiten als 5 Minuten nahezu konstant; bei den Mischungen 1,8 g Knochenasche und 0,9 g ZnS(Ag) sowie 1,8 g Knochenasche und 2,5 g ZnS(Ag) fällt für Reibzeiten größer als 10 Minuten die Zählrate wieder leicht ab. Bei kleinen Reibzeiten steigen bei allen drei Mischungsverhältnissen die Zählraten mit der Reibzeit an. Dieser Anstieg ist aufgrund der geringer werdenden Vorabsorption der α -Strahlung in den kleiner werdenden Knochenpartikeln zu erklären.

Bei diesen Experimenten wurden zunächst die chemisch vorbehandelten Knochenaschen, in die ^{210}Po eingebaut worden war, im Mörser mit dem Pistill leicht zerdrückt, um eine annähernd einheitliche Korngröße der Knochenkristalle zu erhalten (Reibzeit $t = 0$). Es ergibt sich dabei ein Konglomerat von Kristallen mit Durchmessern, deren häufigste Werte zwischen 160 und 240 μ liegen. Das Maximum des Durchmessers liegt bei etwa 600 μ , das Minimum bei 2 - 3 μ . Für Knochenaschenproben, die 10 Minuten lang zerrieben wurden, lag der Durchschnittswert der Korngröße der Kristalle zwischen 1 und 3 μ . Die kleinsten Kristalle hatten eine Größe von etwa 1 μ , die größten Kristalle waren stäbchenförmig mit einer Länge von 13 μ und einer Breite von 2 - 3 μ .

Mit längerer Reibzeit treten die stabförmigen, größeren Kristalle immer seltener auf; zusätzlich sind Kristalle zu beobachten mit einem Durchmesser von weniger als $1\ \mu$.

Die Teilchen des Szintillators ZnS(Ag) haben im Durchschnitt eine Kristallgröße zwischen 13 und $26\ \mu$, der Durchmesser der kleinsten Kristalle liegt bei $7\ \mu$, der der größten bei 50 bis $60\ \mu$.

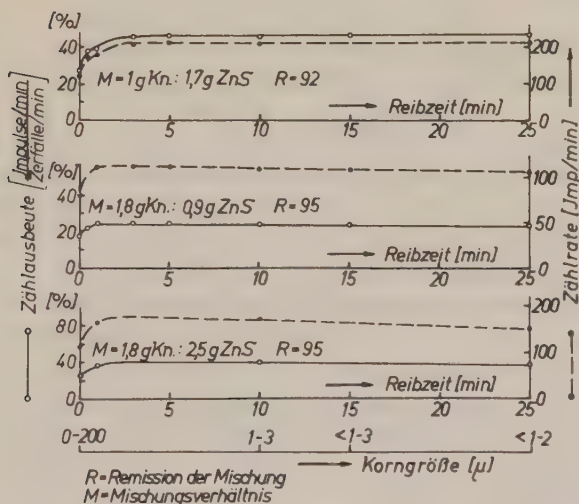


Abb. 8 Zählausbeuten in Abhängigkeit von der Korngröße der Knochenaschen (^{210}Po eingebaut) für verschiedene Mischungsverhältnisse

Bei der Betrachtung der Mischung von Knochenasche und ZnS(Ag) unter dem Mikroskop sieht man, daß sich die Knochenkristalle um ZnS(Ag) -Kristalle als Kern zusammenlagern, so daß das ZnS(Ag)

völlig von Knochenkristallen umgeben ist. In Mischungen mit einem höheren Anteil an Knochenasche (1,8 g Knochenasche mit 0,9 g Zinksulfid vermischt) bleibt ein gewisser Teil der Asche frei und wird nicht in derartige Konglomerate aufgenommen. Freiliegende $\text{ZnS}(\text{Ag})$ -Kristalle oder auch nur mit wenig Asche bedeckte $\text{ZnS}(\text{Ag})$ -Kristalle sind dann sehr selten.

Bei der Mischung 1,0 g Knochenasche und 1,7 g $\text{ZnS}(\text{Ag})$ sieht man andererseits häufiger freie $\text{ZnS}(\text{Ag})$ -Kristalle, die nicht von Knochenasche umlagert sind; als Folge davon ergibt sich bei dieser Mischung eine wesentlich größere Zählausbeute als bei Mischungen mit höherem Knochenaschenanteil.

5. 7. 2 Zählausbeute als Funktion des Mischungs- verhältnisses von Knochenasche und $\text{ZnS}(\text{Ag})$

Untersucht man nun den Einfluß der $\text{ZnS}(\text{Ag})$ -Menge auf die Zählrate, so erhält man für 1 g chemisch präparierte Knochenasche mit eingebautem ^{210}Po bei 1,7 bis 3 Gramm Szintillatorsubstanz eine konstante Zählrate (Abbildung 9). Für 200 mg Knochenasche beginnt dieser Konstanzbereich bei 1 g $\text{ZnS}(\text{Ag})$, für 1,8 g Knochenasche bei 2,5 g $\text{ZnS}(\text{Ag})$, (Abb.9). Abbildung 10 zeigt die Zählrate und Zählausbeute für 1 g chemisch vorbehandelte Knochenasche mit nicht eingebautem ^{210}Po in Abhängigkeit von der hinzugefügten Szintillatormenge für Probenmischungen, die anschließend mit 1 n Salzsäure übergossen und bei 80°C getrocknet wurden.

Zwei Tage nach der Präparation wurden die Proben zum erstenmal gemessen. Gegenüber dieser ersten Messung zeigt die Messung 5 Tage später einen deutlichen Anstieg der Zählrate. Aus dieser Messung ersieht man, daß die Zählausbeute von 50 % (Abbildung 10) bereits bei Mengen von 500 mg $\text{ZnS}(\text{Ag})$ erreicht wird, während vorher für diese Zählausbeute noch mehr als 1000 mg $\text{ZnS}(\text{Ag})$ nötig waren. Hierin ist ein weiterer Anhaltspunkt für die Annahme einer bevorzugten Verteilung des ^{210}Po in der Umgebung der Szintillatorkristalle in feuchtem Salzsäure-Milieu zu sehen.

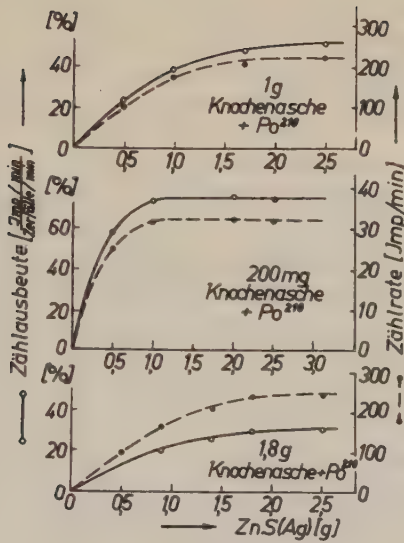


Abb. 9 Zählausbeute als Funktion der ZnS(Ag)-Mengen für verschiedene Knochenaschenmengen (^{210}Po eingebaut) als Parameter

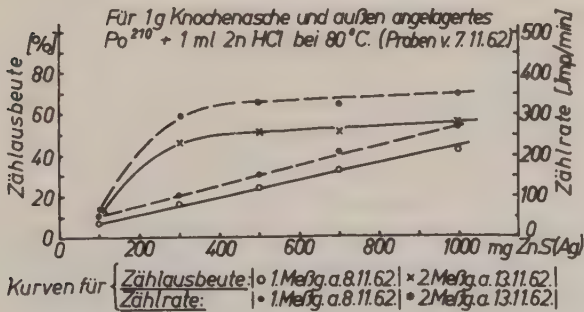


Abb. 10 Zählausbeute und Zählrate als Funktion der ZnS(Ag)-Menge für 1 g Knochenasche mit ^{210}Po vermischt, nach Präparation mit HCl

Die zu diesen Untersuchungen verwandten Knochenaschen sind jeweils 10 Minuten lang zerrieben worden. Die Zeit, die für die Durchmischung dieser Knochenaschen mit dem ZnS(Ag) aufgewandt wurde, betrug für alle Proben 5 Minuten. Eine Vergrößerung dieser Mischzeit erbrachte keine Erhöhung der Zählrate.

Für die folgenden Messungen wurden jeweils 2,7 g der Mischung benutzt. Diese Menge füllte gerade einen Plexiglasbehälter von 4,5 cm Innendurchmesser und 1 mm Höhe. Bei gleichbleibender Gesamtmenge (2,7 g) wurde sodann das Verhältnis von radioaktiv markierter Knochenasche und Zinksulfid variiert. In der Abbildung 11 ist der Verlauf von Zählraten- und Zählausbeute-Kurven für in die Knochenasche eingebautes ^{226}Ra bzw. ^{210}Po in Abhängigkeit von diesem Verhältnis dargestellt. Auf der Abzisse ist der prozentuale Anteil der Knochenasche, in welche die radioaktive Substanz eingebaut worden war, aufgetragen, der sich errechnet, wenn der Wert von 2,7 g = 100 % gesetzt wird. Auf der Ordinate ist die Zählrate in Impulsen pro Minute und die Zählausbeute (Impulse/Zerfall) in Prozenten angegeben. Man sieht, daß das Zählratenmaximum in einem Bereich zwischen 36 % und 52 % radioaktiv markierter Knochensubstanz liegt. Die für beide Kurven benutzte Knochenasche hatte den gleichen Remissionsgrad und war unter den gleichen chemischen Bedingungen gewonnen worden. Die Reibzeit betrug für die Knochenasche ebenfalls 10 Minuten, und für die Vermischung von Asche mit Zinksulfid wurde wieder eine Zeit von 5 Minuten aufgewandt.

Mischt man chemisch nicht behandelte Knochenasche eines Rentiers mit ZnS(Ag) , so liegt das Maximum der Zählrate bei einem Anteil von etwa 20 % Knochenasche, wenn die Gesamtmenge der Probenmischung = 2,7 g wieder 100 % gesetzt wird. Es ist also gegenüber dem Maximum der chemisch vorbehandelten Knochenasche nach links verschoben (Abbildung 12). Die gemessene Zählrate stammt zum überwiegenden Teil von dem im Knochen des Rentiers befindlichen natürlich radioaktiven Nuklid ^{210}Po (siehe Kapitel 3. 1).

Die gleiche Linksverschiebung des Zählratenmaximums erhält man auch für chemisch unbehandelte Knochenaschen, die mit ^{226}Ra -Lösung übergossen, getrocknet und dann gemessen wurden (Abb.12).

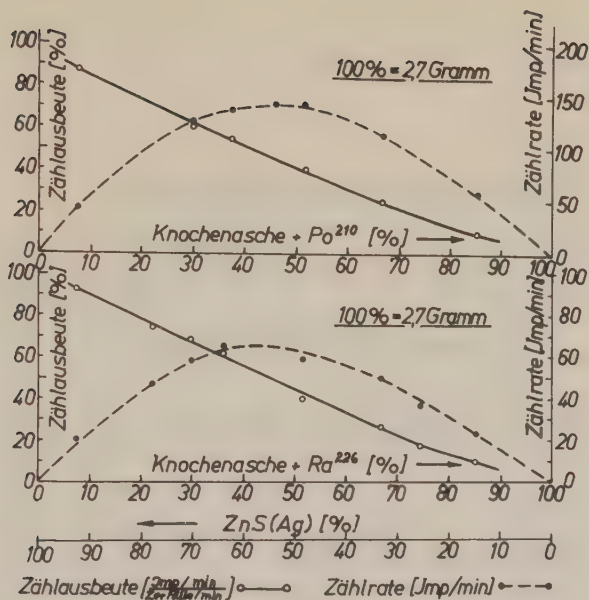


Abb. 11 Zählausbeute und Zählrate als Funktion des Mischungsverhältnisses von Knochenasche zu $ZnS(Ag)$ für in die Knochenasche eingebautes ^{226}Ra und ^{210}Po

Eine Erklärung für diese Linksverschiebung kann wohl in der größeren Lumineszenzabsorption der chemisch unbehandelten Knochenasche gesehen werden (siehe Kapitel 5. 7. 5).

Im folgenden wurde die Zählrate in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis für den Fall des nur oberflächlich an die Trägersubstanz angelagerten ^{210}Po bei salzsäurehaltigen Proben studiert. Chemisch behandelte Knochenasche, die mit ^{210}Po durch Vermischen radioaktiv markiert wurde, zeigt bei Zugabe von Salzsäure nach

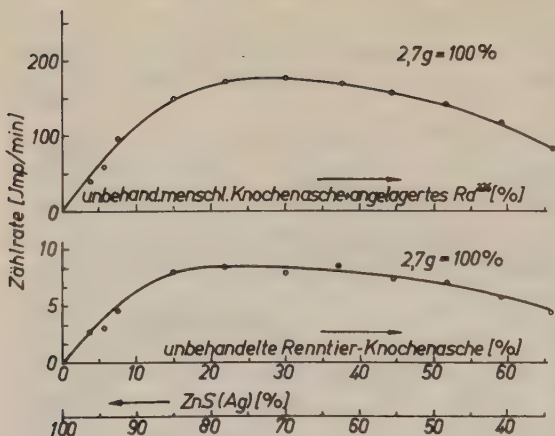


Abb. 12 Zählrate in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis Knochenasche zu ZnS(Ag)

1. für chemisch unbehandelte Knochenasche und angelagertes ^{226}Ra
2. für unbehandelte Rentierknochenasche

der Durchmischung mit Zinksulfid den bereits beschriebenen Anstieg der ^{210}Po -Zählrate. Mißt man nun nach Erreichen des Sättigungswertes die Zählrate für verschiedene Mischungsverhältnisse, so erhält man gegenüber den für eingebaute Nuklide ermittelten Mischkurven eine Verschiebung des Kurvenmaximums nach rechts (Abbildung 13). (Vergleiche hierzu auch Tabelle 15 und Tabelle 16).

Abbildung 13 zeigt außerdem die Ausbeute in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis für NaCl , das mit ^{210}Po -Lösung bekannter Aktivität übergossen und dann getrocknet wurde. Die Messung fand 1 Tag nach der chemischen Präparation statt. Wie man aus der Abbildung ersieht, erhält man auch hier eine Verlagerung des Ausbeutemaximums nach größeren Mischungsverhältnissen hin. Da die Wahrscheinlichkeit, daß ein ^{210}Po -Zerfall gezählt wird, in der unmittelbaren Nähe des ZnS(Ag) -Kristalls am größten ist und man

unter diesen Versuchsbedingungen mit einer gerichteten Diffusion des ^{210}Po zum ZnS(Ag) hin rechnen kann, ergibt sich eine Zählratenerhöhung, die mit wachsender Knochenaschenmenge ansteigt, solange genügend Szintillatorsubstanz zum Zählen vorliegt.

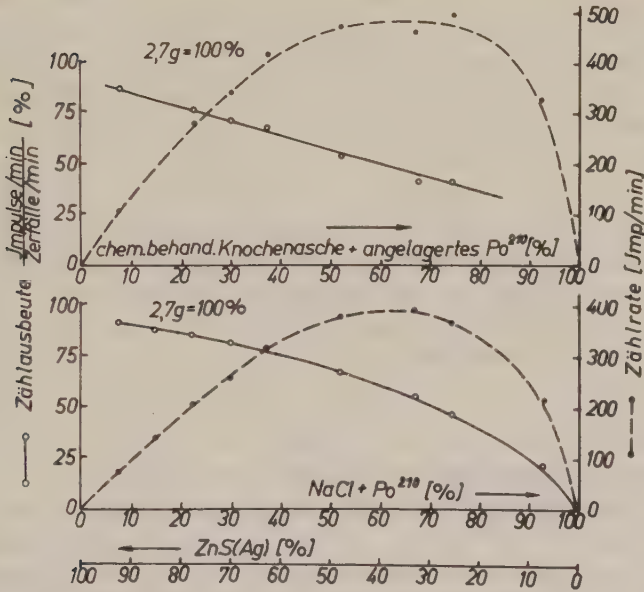


Abb. 13

Zählrate als Funktion des Mischungsverhältnisses für

1. an Knochenasche angelagertes ^{210}Po mit nachfolgender Präparation der Mischung mit Salzsäure
2. Natriumchlorid markiert mit ^{210}Po und ZnS(Ag)

5. 7. 3 Sättigungsschichtdicken für ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po

Für das günstigste Mischungsverhältnis von 1 g chemisch vorbehandelter Knochenasche, in welche das entsprechende Radionuklid eingebaut worden war, und 1,7 g ZnS(Ag) wurde als nächstes die Probendicke bestimmt, bei der das Zählratenmaximum erreicht wird. (Zur Messung wurden die üblichen Probenbehälter mit 5,2 cm Außen- bzw. 4,5 cm Innendurchmesser verwandt). Verdoppelt man die Menge radioaktiv markierter Asche und Zinksulfid, so erhält man bei Proben mit ^{210}Po eine Zählratenerhöhung von 30 %. Eine Verdreifachung der Menge ergab darüberhinaus keine weitere Erhöhung der Zählrate. Für ^{210}Po liegt daher für das Mischungsverhältnis 1,0 : 1,7 die Sättigungsmenge der Mischung bei 5,4 g (2,0 g Knochenasche + 3,4 g Zinksulfid). Um eine gute Durchmischung der einzelnen Proben zu gewährleisten, wurden bei diesen Experimenten jeweils Teilmengen von 1,0 g Knochenasche + 1,7 g ZnS(Ag) 5 Minuten lang verrührt und dann übereinandergeschichtet. Mißt man die Sättigungsdicke für ein Mischungsverhältnis von 1,8 g Knochenasche : 0,9 g ZnS(Ag) , so ergibt eine Verdoppelung der Menge nur noch eine Zählratenerhöhung von etwa 10 %.

Bei Messungen der gesamten α -Strahlung des ^{226}Ra zeigt sich für ein Mischungsverhältnis von 1,0 g Knochenasche : 1,7 g ZnS(Ag) bei Verdoppelung der Menge von 2,7 g auf 5,4 g eine Erhöhung der Zählrate um etwa 35 %, eine Verdreifachung der Menge lieferte keine zusätzliche Zählratenerhöhung. Für ^{228}Th ergab sich unter den gleichen Verhältnissen eine Erhöhung der gesamten α -Rate um 50 % und der Koinzidenzrate um 40 %. Eine Verdreifachung der ursprünglichen Menge zeigte auch hier sowohl in Bezug auf die Gesamt- α -Rate als auch in Bezug auf die Koinzidenzrate keinen Effekt mehr. Da die α -strahlenden Nuklide der Thoriumreihe im Mittel höhere α -Energien besitzen als die der Radiumreihe, ist diese Diskrepanz in der Zählratenerhöhung zwischen ^{228}Th und ^{226}Ra bei Vergrößerung der Schichtdicke erklärlich.

Aus praktischen Gründen erweist es sich zuweilen als günstig, mit Mischungen von 1,8 g radioaktiv markierter Knochenasche und 2,5 g ZnS(Ag) zu arbeiten. Für dieses Mischungsverhältnis ergibt

sich eine Zählrate, die in etwa der Zählrate entspricht, die bei Sättigungsdicken für ein Mischungsverhältnis von 1,0 : 1,7 gemessen werden.

5. 7. 4 Überprüfung des linearen Zusammenhangs von Zählrate und Zerfallsrate

Mit Hilfe von Messungen an Proben mit eingebautem ^{210}Po wurde gesichert, daß Mischungen mit verschiedenem ^{210}Po -Gehalt, sonst aber gleichen Bedingungen (innerhalb der Fehlergrenze, siehe Seite 79) zu einem konstanten Ausbeutewert führen. Die Zählrate wächst proportional mit der Radioaktivität der Probe. Zu dem gleichen Ergebnis führten Messungen an Proben mit verschieden hohem ^{226}Ra - und ^{228}Th -Gehalt. Die bei diesen Versuchen benutzte kleinste Aktivität war $3,8 \cdot 10^{-13}\text{C}$. Diese Konstanz der Ausbeute gilt auch für noch kleinere Aktivitäten, wie die Bilanzmessungen an menschlichen Knochen im Bereich der natürlichen Radioaktivität sowie die Vergleiche der Ergebnisse mit den nach anderen Meßmethoden gefundenen Resultaten für den ^{228}Th - und ^{226}Ra -Gehalt (siehe Kapitel 6 und 7) zeigen.

5. 7. 5 Einfluß des Absorptionskoeffizienten der Mischung für das Lumineszenzlicht des $\text{ZnS}(\text{Ag})$

Um die Abhängigkeit der Zählraten von der Helligkeit (Grad der Dunkelfärbung der Knochenasche) der Meßprobe zu untersuchen, wurde der Remissionsgrad von Knochenaschen und Mischungen mit einem lichtelektrischen Remissionsphotometer ermittelt und so dann die Zählausbeute von Proben verschiedener Remissionsgrade bestimmt (bei gleichbleibendem Mischungsverhältnis und für das jeweils gleiche radioaktive Nuklid, welches in die Knochenasche eingebaut worden war).

Da die Remission eine monoton fallende Funktion der molaren Konzentration des absorbierenden Stoffes im zu untersuchenden Pulvermaterial und des molaren Extinktionskoeffizienten ist, kann sie als Maß für die Absorption des Lumineszenzlichtes in der Probenmischung Knochenasche und $\text{ZnS}(\text{Ag})$ angesehen werden (81).

Wegen der Abhängigkeit des Remissionsgrades von der Korngröße des zu messenden Pulvers wurde bei den Messungen sorgfältig darauf geachtet, daß die Korngröße von Knochenasche und $\text{ZnS}(\text{Ag})$ stets dieselbe war (81). Die für die Knochenasche verwendete Reibzeit betrug 10 Minuten und lieferte eine stets gleichmäßige Verteilung der Korngrößen der Knochenkristalle.

Die Lumineszenzintensität des Zinksulfids hat bei einer Wellenlänge von etwa $4500 \text{ \AA}$ ihr Maximum. Durch diese Lumineszenz des Zinksulfids wird aber der Aussagewert der Remissionsmessung von Mischungen aus Knochenasche und $\text{ZnS}(\text{Ag})$ aus folgenden Gründen nicht beeinträchtigt :

In dem Remissionsphotometer "Elrepho", mit dem sämtliche Messungen durchgeführt wurden, werden die Proben mit ungefiltertem Glühlicht beleuchtet. Die Filterung erfolgt erst vor der Photozelle (79) (81). Dadurch wird nur der Einfluß des absorbierenden Stoffes auf die Remission der gewünschten Wellenlänge geprüft, gleichgültig ob es sich um remitiertes Licht im engeren Sinne oder um Lumineszenzlicht handelt.

Ein Meßfehler durch Lumineszenzlicht fällt um so weniger ins Gewicht; je weniger selektiv die Absorption der fraglichen Partikel ist. Für die vorliegenden Proben kann dies Verhalten angenommen werden, da die Farbe der absorbierenden Teilchen schwarz oder grau ist. Außerdem wurde durch die Aufnahme der Zählausbeute in Abhängigkeit vom Remissionsgrad der Mischung (bzw. der Knochenasche) rein empirisch der Zusammenhang zwischen Zählrate und Remissionsgrad bestimmt, so daß ein eventueller restlicher geringer Fehler infolge des Lumineszenzlichtes der Mischung in die Zählausbeuten-kurve mit eingeht.

In den nächsten drei Abbildungen ist die Zählausbeute für die gesamte α -Strahlung von ^{210}Po , ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th + Folgeprodukte in Abhängigkeit vom Remissionsgrad der Mischung für drei verschiedene Mischungsverhältnisse (1,0 : 1,7 ; 1,8 : 0,9 ; 1,8 : 2,5) dargestellt (siehe Abbildung 14, Abbildung 15 und Abbildung 16).

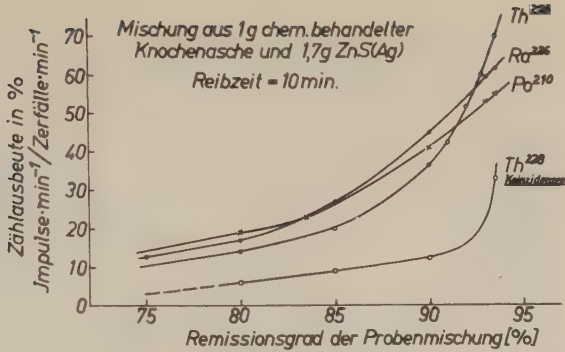


Abb. 14 Zählausbeute für die gesamte α -Aktivität von ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th + Folgeprodukte, ^{210}Po und für die Thorium-Koinzidenzen ($\text{Tn} \rightarrow \text{ThA} \rightarrow \text{ThB}$) als Funktion des Remissionsgrades der Mischung (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) bei einem Mischungsverhältnis von 1,0 g chemisch behandelter Knochenasche zu 1,7 g ZnS(Ag)

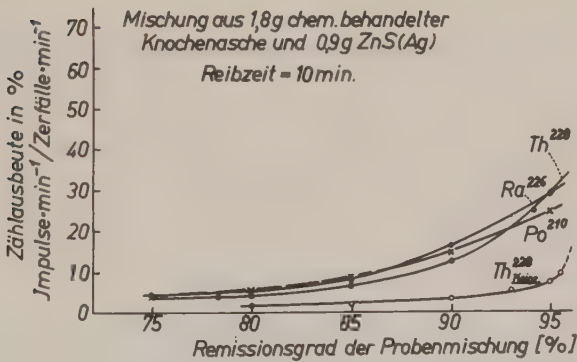


Abb. 15 Zählausbeute für die gesamte α -Aktivität von ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th + Folgeprodukte, ^{210}Po und für die Thorium-Koinzidenzen ($\text{Tn} \rightarrow \text{ThA} \rightarrow \text{ThB}$) als Funktion des Remissionsgrades der Mischung (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) bei einem Mischungsverhältnis von 1,8 g chemisch behandelter Knochenasche zu 0,9 g ZnS(Ag)

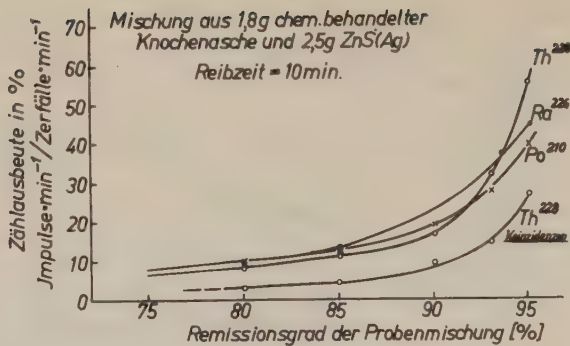


Abb. 16 Zählausbeute für die gesamte α -Aktivität von ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th + Folgeprodukte und ^{210}Po und für die Thorium-Koinzidenzen ($\text{Th} \rightarrow \text{ThA} \rightarrow \text{ThB}$) als Funktion des Remissionsgrades der Mischung (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) bei einem Mischungsverhältnis von 1,8 g chemisch behandelter Knochenasche zu 2,5 g ZnS(Ag)

In Tabelle 18 sind die Remissionswerte (gemessen bei Filter R 49, $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) für Proben mit verschiedenen Mischungsverhältnissen von Knochenasche zu Zinksulfid dargestellt. Mit Hilfe dieser Proben wird die Abhängigkeit der Zählausbeute von dem Remissionsgrad gemessen. Ein Vergleich des Remissionswertes von Proben aus Knochenasche und solchen aus Knochenasche-Zinksulfid-Mischungen zeigt, daß die Remission der Präparate durch den Zinksulfidgehalt beeinflußt wird. Der unter den gleichen Bedingungen gemessene Remissionsgrad des Zinksulfids beträgt 89 %.

Die zur Bestimmung der Zählausbeute von ^{210}Po benutzte Eichlösung hatte eine Fehlerbreite von $\pm 2 \%$, die Ungenauigkeit der entsprechenden ^{226}Ra -Lösung war $\pm 1 \%$. Der ^{210}Po -Gehalt dieser Radium-Eichlösung betrug dabei 20 % der ^{226}Ra -Aktivität (bedingt durch den ^{210}Pb -Gehalt der ^{226}Ra -Eichlösung).

Zur Durchführung der ^{228}Th -Kalibrierung der Mischproben standen drei Ampullen mit vom "Radiochemical Centre Amercham, England" geeichten Lösungen zur Verfügung, deren Aktivität mit

einer Genauigkeit von $\pm 10\%$ angegeben war. Die angegebenen Aktivitätswerte der drei Ampullen wurden mit Hilfe γ -spektrometrischer Messungen unter gleichbleibenden geometrischen Bedingungen einer Kontrolle unterzogen. Die Messungen der Aktivitätswerte von zwei Ampullen ergaben, bezogen auf die dritte Ampulle, dabei eine Übereinstimmung zwischen den angegebenen Eichwerten und den gemessenen Aktivitätswerten innerhalb von $\pm 2\%$. Die Angaben auf den drei Proben entsprachen sich also gegenseitig.

a	b	b	b
Remissionsgrad der Knochenasche (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$)	Remissionsgrad der Mischung (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) 1,0 : 1,7	Remissionsgrad der Mischung (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) 1,0 : 0,9	Remissionsgrad der Mischung (für $\lambda = 4900 \text{ \AA}$) 1,8 : 2,5
[%]	[%]	[%]	[%]
72,4	74,2	75,5	74,2
75,3	77,3	75,3	76,4
77,1	78,4	78,4	78,5
82,1	83,7	83,9	83,8
84,3	84,4	84,6	84,5
84,6	84,5	84,7	84,6
87,5	87,0	87,1	87,0
88,0	87,5	88,2	87,9
89,2	88,4	89,0	88,9
92,6	91,4	92,4	92,2
93,6	92,0	93,7	93,4
94,3	92,7	94,4	93,5
95,0	92,7	94,5	93,8
95,3	92,6	94,8	94,1
96,6	93,3	95,6	94,9
97,0	93,5	95,6	94,9

Tabelle 18

Remissionswerte von

a) Knochenasche

b) Knochenasche vermischt mit ZnS(Ag) für verschiedene Mischungsverhältnisse

Eigene Messungen von mehreren auf Glasplättchen aufgetragenen Tropfen einer solchen ^{228}Th -Lösung mit Hilfe von Zinksulfid-Schirmen, nach der Methode von TURNER, RADLEY und MAYNEORD (74), führten zu dem angegebenen Eichwert bis auf $\pm 5\%$ Abweichung.

Zur Kalibrierung der angewandten Meßmethode wurde die Knochenasche mit den einzelnen Eichlösungen versetzt und nach der für den chemischen Einbau der radioaktiven Nuklide ausgearbeiteten Präparationsvorschrift weiterbehandelt (siehe Kapitel 5. 7). Durch diese chemische Behandlung nehmen auch vorher graue Knochenaschen eine helle Farbe an, daher ist es für die Erzielung von Remissionswerten in einem Bereich von 75 - 85 % notwendig, die Knochenaschen wieder künstlich grau zu färben. Dies geschah in einfacher Weise dadurch, daß während der Trocknung bei 400°C ein Stück Pappe neben die Probe in den Veraschungssofen gelegt wurde. Man erhält so die gleichen Verfärbungen der Aschen wie sie bei einer normalen Veraschung eines Knochens bei 600°C auftreten können.

Da die mit der chemischen Verarbeitung verbundenen Aktivitätsverluste auch bei den zur Kalibrierung verwandten Knochenaschen auftreten, sind diese bereits in der ermittelten Zählausbeute mitenthalten. In Vorversuchen wurde trotzdem der Einfluß der chemischen Präparation (Eindampfen und Bleichen) auf die in den Proben vorhandenen radioaktiven Nuklide gesondert geprüft. Es wurden die in den Präparationsschälchen nach der chemischen Verarbeitung von ^{210}Po -markierten Knochenaschen noch verbleibenden ^{210}Po -Atome mittels kochender Salzsäure herausgelöst und elektrochemisch aus der Säure auf Silberfolie abgeschieden. Die auf den Silberblechen gemessene Radioaktivität betrug etwa 0,5 % der ursprünglich vorhandenen Gesamtaktivität. Daher konnte angenommen werden, daß der durch Adsorption an den Gefäßwänden verursachte Aktivitätsverlust 1 % nicht überstieg. Parallelversuche mit ^{226}Ra und ^{228}Th zeigten das gleiche Ergebnis.

Eine weitere Gefahr des Verlustes an Polonium ergibt sich im Laufe der chemischen Präparation beim Abrauchen durch Verdampfen. Für ein langsames Abrauchen der ^{210}Po -Lösung ist dieser Verlust kleiner als 10 % (oft konnte bei entsprechend vorsichtigem Arbeiten überhaupt kein ^{210}Po -Verlust festgestellt werden); er kann sich jedoch bei schnellem Abrauchen bis zu 20 % der ursprünglich vorhandenen Aktivität erhöhen. Durch das nachfolgende Erhitzen der Proben im Ofen wird bei sorgfältigem Arbeiten der ^{210}Po -Gehalt nicht mehr merklich verändert. Aus den nur schwer

löslichen Sulfat-Aschen kann der ^{210}Po -Gehalt mit einer Genauigkeit von 4 % bestimmt werden. In Bezug auf ^{226}Ra und ^{228}Th waren durch das Eindampfen der Lösung sowie durch den Trockenprozeß im Ofen keine Verluste zu erwarten (82) (83).

Die Streuung der Zählausbeutewerte sowie der Remissionswerte bedingt für die ^{210}Po -Messung einen Fehler von ± 10 % bei den Mischungsverhältnissen 1,0 : 1,7 und 1,8 : 0,9. Bei dem Mischungsverhältnis 1,8 : 2,5 waren die Schwankungen in der Zähl- ausbeute etwas größer, und der mittlere Fehler belief sich auf ± 15 %. Für ^{226}Ra gelten dieselben Fehlerangaben.

Da die ^{228}Th -Eichung nur auf ± 10 % genau ist, war der gesamte mittlere Fehler der ^{228}Th -Zähl- ausbeuten trotz gleichgroßer Schwankungen der Meßwerte der Ausbeutekurven größer als bei ^{226}Ra und ^{210}Po . Der Fehler der Ausbeutewerte für die Mischungsverhältnisse 1,0 : 1,7 und 1,8 : 0,9 belief sich bei der ^{228}Th - Bestimmung auf ± 15 %, für das Mischungsverhältnis 1,8 : 2,5 betrug der Fehler ± 18 %. Die statistische Schwankung der Zähl- rate ist gegenüber den hier betrachteten Schwankungen der Zähl- ausbeute vernachlässigbar, da mit sehr großen Zählraten gearbeitet wurde. Die diskutierten Fehler bei der Ermittlung der Zähl- ausbeuten wurden aus 10 - 15 verschiedenen Probenmessungen bei jeweils gleichem Remissionsgrad der Aschen ermittelt. Sie gelten für einen Remissionsbereich der Knochenaschen von 90 - 95 %.

Vergleicht man nun für ein bestimmtes Mischungsverhältnis und für sehr hohe Remissionswerte in den drei Abbildungen 14, 15 und 16 (siehe S. 75 und 76) die verschiedenen Ausbeutewerte für die einzelnen Nuklide ^{228}Th + Folgeprodukte, ^{226}Ra + Folgeprodukte und ^{210}Po , so zeigt sich, daß für große Remissionswerte dem Nuklid mit den höchsten α -Energien in seiner Zerfallsreihe auch die höchsten Ausbeutewerte zukommen. Dies gilt für alle drei Mischungsverhältnisse. Es zeigt sich außerdem, daß die ^{228}Th - Kurven im Bereich für große Remissionswerte steiler verlaufen als die Kurven für ^{226}Ra und ^{210}Po .

Nach den Abbildungen 14, 15 und 16 liegen die Zähl- ausbeuten für ^{210}Po und ^{226}Ra bei geringen Remissionswerten höher als die Aus- beuten für die α -Strahlung des ^{228}Th und seiner Folgeprodukte.

Es kann angenommen werden, daß dies in der günstigeren Verteilung des ^{210}Po und des ^{226}Ra und seiner Folgeprodukte im Hinblick auf die Anordnung der Zinksulfidkristalle liegt. Aus dem bereits Gesagten (siehe Kapitel 5. 4) kann man annehmen, daß ein Teil der Poloniumatome zum Zinksulfid diffundiert, wodurch eine Verbesserung der Zählausbeute erhalten wird. Die günstigere Zählausbeute beim ^{226}Ra wird durch die Diffusion des Edelgases Radon erreicht (Halbwertszeit 3,8 Tage). Die Wanderung des Radons erhöht die Nachweiswahrscheinlichkeit für alle Folgeprodukte des ^{226}Ra . Zusätzlich kann man annehmen, daß das Polonium-Isotop RaA sich bevorzugt an das Zinksulfid anlagert.

Das Edelgas Thoron als Folgeprodukt des ^{228}Th kann wegen seiner kurzen Halbwertszeit nur viel kleinere Diffusionswege zurücklegen als das Radon. Die Auswirkung einer in Hinblick auf den Szintillator ungleichmäßigen, für den Nachweis also ungünstigen Ausgangsverteilung des ^{228}Th kann daher kaum durch Diffusion des Thorons ausgeglichen werden. Zusammenfassend kann also gesagt werden, daß die günstige Verteilung bei ^{210}Po im wesentlichen auf eine chemische Ursache zurückzuführen ist, bei ^{226}Ra dagegen vorwiegend auf physikalische Ursachen. Für ^{228}Th und dessen Folgeprodukte ist eine merkliche Verbesserung einer ungünstigen Ausgangsverteilung gegenüber dem Szintillator nicht zu erwarten.

Die α -Teilchen des ^{210}Po , das chemisch an das ZnS(Ag) gebunden ist oder sich unmittelbar in dessen Nähe befindet, verlieren praktisch ihre gesamte Energie in den ZnS(Ag) -Kristallen. Da die absorbierte Energie für diese α -Teilchen annähernd gleich ist, gilt dies auch für die pro Teilchen ausgesandte Lichtintensität. Die α -Teilchen des nicht dicht an das ZnS(Ag) gebundenen ^{210}Po verlieren ihre Energie zum Teil durch Absorption im Knochen und können nur einen Bruchteil ihrer Energie in den ZnS(Ag) -Kristallen umsetzen. Die hierdurch ausgesandte Lichtintensität pro Teilchen ist kleiner und unterliegt einer breiteren Verteilung.

Da aber das vom ZnS(Ag) emittierte Licht durch Eigenabsorption (im ZnS(Ag)) und Fremddabsorption (in der Knochenasche) je nach Mischungsart (Remission der Mischung) und Mischungsverhältnis

absorbiert wird und da die Zählapparatur kleinere Lichtintensitäten pro Impuls diskriminiert, werden nicht alle Impulse gezählt, die zu einer Lichtausbeute führen.

Die Zählausbeute hängt also ab von der Durchlässigkeit des Lumineszenzlichtes der Probe, d.h. vom Grade der Helligkeit. Bei dunklen Proben werden nur die Lichtimpulse mit größerer Intensität gezählt. Bei ^{210}Po rühren diese hauptsächlich von den chemisch an das ZnS(Ag) gebundenen Poloniumatomen her. Ein Steigen der Helligkeit führt im Bereich kleinerer Remissionswerte bei Polonium nur zu einer geringen Erhöhung der Zählausbeute, da sich die Lichtintensität pro Impuls wegen der chemischen Bindung zwischen Polonium und Zinksulfid nicht wesentlich ändert. Bei weiterer Erhöhung der Helligkeit werden α -Teilchen von ^{210}Po gezählt, die nicht dicht bei den ZnS(Ag) -Kristallen liegen; die Zählausbeute wird in diesem Remissionsbereich mit der Helligkeit stärker ansteigen.

Beim ^{228}Th mit seinen Folgeprodukten, das keine bevorzugte Lage zum ZnS(Ag) besitzt, wird bei dunklen Proben die Zählausbeute geringer sein als beim Polonium. Es ist anzunehmen, daß die mittlere Energie, die in den ZnS(Ag) -Kristallen umgesetzt wird, durch die Vorabsorption geringer ist als bei den α -Teilchen des dicht am ZnS(Ag) liegenden Poloniums, obwohl die maximale Energie des ^{228}Th mit seinen Folgeprodukten höher liegt. Die Höhe der Ausbeute hängt danach im Remissionsbereich der dunkleren Proben merklich von der Verteilung der radioaktiven Nuklide in der Mischung ab.

Bei helleren Proben wird die Zählausbeute für ^{228}Th stärker ansteigen und schließlich oberhalb der Zählausbeute des Poloniums zu liegen kommen. Die Zählausbeute wird nun stärker durch die Energie der α -Strahlung bestimmt und nicht vorwiegend durch die Verteilung der α -strahlenden radioaktiven Nuklide. Da bei diesen Proben die Absorption des vom Zinksulfid emittierten Lumineszenzlichtes geringer ist, können auch die kleineren Lichtimpulse im Spektrum des ^{228}Th -Lumineszenzlichtes aus der Probe austreten. Außerdem zeigen die Ausbeutekurven bei Proben mit großer Remission auch für die Zählausbeute des ^{210}Po den zu

erwartenden Anstieg, der ebenfalls durch die nun mögliche Registrierung von Lichtimpulsen mit kleineren Energien als der maximalen Energie hervorgerufen wird.

Bei Proben hoher Remission ist die Ausbeute für ^{228}Th bei einem Mischungsverhältnis von 1,0 g Knochenasche zu 1,7 g Zinksulfid wesentlich größer als für ^{210}Po , was im wesentlichen auf die höhere Energie der α -Teilchen des ^{228}Th zurückzuführen ist. Für das Verhalten des ^{226}Ra im Vergleich zum ^{228}Th gilt die gleiche Überlegung wie für das ^{210}Po . Durch die Diffusion des Radons besitzt ^{226}Ra eine bevorzugtere Lage zum Szintillator als das ^{228}Th . Daher ist die Zählausbeute in dunkleren Proben größer als die Zählausbeute für ^{228}Th . In hellen Proben mit großen Remissionswerten liegt dann entsprechend der Energie der α -Teilchen von ^{226}Ra und seinen Folgeprodukten die Zählausbeute zwischen den Ausbeutewerten von ^{228}Th und ^{210}Po .

Besonders ausgeprägt sind die diskutierten Unterschiede in den Ausbeuten der verschiedenen radioaktiven Nuklide bei den Mischungsverhältnissen 1,0 : 1,7 und 1,8 : 2,5. Bei dem Verhältnis 1,8 : 0,9 ist dagegen die höhere Ausbeute für die α -Teilchen des ^{228}Th im Bereich größerer Remission nur angedeutet. Infolge des Überschusses an Asche ist bei diesem Mischungsverhältnis ein größerer Einfluß der Verteilung der radioaktiven Nuklide in der Probe auf die Zählrate zu erwarten. Man erhält daher erst bei sehr hohen Remissionswerten ein Anwachsen der Zählausbeute für ^{228}Th und dessen Folgeprodukte (Abbildung 15).

Wenn man die mit "optimalen Mischungen" (bei denen für ein Mischungsverhältnis von 1,0 g Knochenasche : 1,7 g Zinksulfid der Szintillator Zinksulfid selbst mit ^{228}Th -Lösung getränkt worden war) für sehr hohe Remissionswerte erhaltenen Zählausbeuten von ^{228}Th zugrunde legt und daraus mit Hilfe der Zählausbeutekurve für in die Knochenasche eingebautes ^{228}Th auf sehr kleine Remissionen extrapoliert, erhält man eine Zählausbeute, die der von Polonium und Radium entspricht (Abbildung 14). Das legt den Schluß nahe, daß die bei unseren Proben beobachtete geringere Zählausbeute für ^{228}Th im Bereich kleiner Remissionswerte auf die schlechtere Verteilung des ^{228}Th und dessen Folgeprodukte in der Mischung zurückzuführen ist.

Die jeweils unterste Kurve in den Abbildungen 14, 15 und 16 gibt die Ausbeute der Radiothorkoinzidenzen (bedingt durch die beiden sehr rasch aufeinanderfolgenden α -Übergänge $Tn \rightarrow ThA \rightarrow ThB$) in Abhängigkeit vom Remissionsgrad der Mischung für verschiedene Mischungsverhältnisse wieder. Analog zu den Messungen mit der Schirmmethode sind auch hier die α -Koinzidenzen innerhalb einer vorgegebenen Koinzidenzzeit von 0,32 sec dem Radiothorgehalt der Knochenasche proportional. Es ist dabei radioaktives Gleichgewicht des ^{228}Th mit seinen Folgeprodukten vorausgesetzt (siehe Kapitel 4. 2 und 4. 3).

Die Bestimmung der Zählausbeute der Koinzidenzen der Mischungen geschah jeweils parallel zu den Messungen der gesamten α -Strahlung der ^{228}Th -Präparate bekannter Radioaktivität in Abhängigkeit von der Remission. Dabei waren allerdings noch die gemessenen Koinzidenzraten mit den zufälligen Koinzidenzen zu korrigieren. (Wahre Koinzidenzrate = gemessene Koinzidenzrate minus zufällige Koinzidenzrate).

Zum Studium der zufälligen Koinzidenzen in Abhängigkeit von der Zählrate wurde eine Bergkristallprobe mit praktisch verschwindendem ^{228}Th -Gehalt mit ^{210}Po bzw. ^{226}Ra getränkt und daraus eine Mischung mit Zinksulfid im Verhältnis 1,8 g Bergkristall zu 0,9 g Zinksulfid hergestellt. An dieser Probe wurden die zufälligen Koinzidenzen in einem Zählratenbereich zwischen 0,5 Impulsen/Minute und 40 Impulsen/Minute gemessen. Als Ergebnis dieser Versuche ist die Anzahl zufälliger Koinzidenzen pro 1000 Einzelimpulsen in Abhängigkeit von der Zählrate dargestellt worden. Diese so ermittelte Kurve ergab eine Gerade. Eine Extrapolation dieser Geraden für die Zählrate gegen 0 Impulse/Minute ergibt auf der Ordinate einen Wert von drei Doppelzerfällen pro 1000 α -Einzelimpulsen. Diese Koinzidenzrate entspricht der Eigenverseuchung des $ZnS(Ag)$ und des Bergkristallpulvers mit ^{228}Th . Die um diesen Wert korrigierte Kurve gibt dann die Abhängigkeit der zufälligen Koinzidenzen von der Zählrate wieder (Abbildung 17). Diese Resultate stehen in guter Übereinstimmung mit den Messungen von MAYNEORD, RADLEY und TURNER, die mit Hilfe von Zinksulfidschirmen durchgeführt wurden (74). Bei kleinen

Zählraten waren Meßzeiten von 3 Wochen und länger nötig, um die erhaltene zufällige Koinzidenzrate zu sichern. Der Meßfehler beträgt $\pm 15\%$ für die Zählraten zwischen 0 und 10 Impulsen/Minute und $\pm 10\%$ für Impulsraten über 10 Impulsen/Minute.

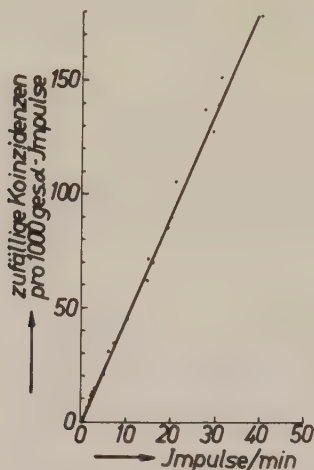


Abb. 17 Zufällige Koinzidenzrate in Abhängigkeit von der Zählrate für eine Koinzidenzzeit von 0,32 sec

Die Unsicherheit der Zählausbeutebestimmung für die ^{228}Th -Koinzidenzen beträgt für die Mischungsverhältnisse von 1,0 : 1,7 und 1,8 : 0,9 $\pm 25\%$ und für das Mischungsverhältnis 1,8 : 2,5 $\pm 27\%$. Bei diesen Angaben ist der Fehler der zur Kalibrierung benutzten ^{228}Th -Stammlösung von $\pm 10\%$ bereits berücksichtigt worden.

5. 7. 6 Vergleich der Nachweisempfindlichkeit von
Zinksulfid-Schirmmethode und Mischmethode

Vergleicht man für gleiche spezifische Radioaktivitäten die bei Anwendung der Zinksulfid-Schirmmethode erhaltenen Zählraten mit denen der Mischmethode unter Bezug auf gleiche Probenflächen, so zeigt sich, daß selbst für die ungünstigste Mischung (1,8 : 0,9) die Mischmethode der Schirmmethode um mehr als den Faktor 10 überlegen ist. Die bei Anwendung der Schirmmethode zu erwartenden Zählraten wurden dabei aus den spezifischen Aktivitäten nach den bereits bekannten Gleichungen für die gesamten α -Impulse (Gleichung 11) und die Koinzidenzen (Gleichung 15) für eine Probenschale mit 4,5 cm Innendurchmesser errechnet und mit den gemessenen Zählraten der ^{210}Po -, ^{226}Ra - und ^{228}Th -markierten Knochenaschen-ZnS(Ag)-Mischungen für die jeweils höchsten Remissionswerte verglichen. Während die errechnete Radioaktivität für die reine Knochenasche gilt, bezieht sich die Zählrate der Mischmethode auf die chemisch bereits bearbeitete Asche. Die Verhältnisse der nach beiden Methoden gewonnenen Zählraten sind in der folgenden Tabelle für verschiedene Mischungsverhältnisse zusammengestellt (Tabelle 19).

	Mischungsverhältnis Knochenasche : ZnS(Ag)	Verhältnis der Zählraten der Mischmethode zu denen der Schirmmethode
Für Einzelimpuls- messungen	1,8 : 0,9	11
	1,0 : 1,7	14
	1,8 : 2,5	19
Für Messungen der Thorium Koinzidenzen	1,8 : 0,9	9
	1,0 : 1,7	19
	1,8 : 2,5	26

Tabelle 19 Zählratenvergleiche der Meßergebnisse von
Mischmethode und ZnS-Schirmmethode

6 Messungen des ^{228}Th - und ^{226}Ra -Gehaltes im
menschlichen Knochen

Als Anwendung wurde mit der Mischmethode in menschlicher Knochenasche der gesamte Gehalt an α -strahlenden Nukliden sowie deren ^{228}Th -Aktivität gemessen und anschließend ihr ^{226}Ra -Gehalt errechnet. Zur Erhöhung der Meßempfindlichkeit wurde dabei mit einem Multiplier vom Typ Dumont 6364 (Außendurchmesser 5") gearbeitet und Probenbehälter mit 11,5 cm Außendurchmesser benutzt (Abb. 6). Da sämtliche früheren Kalibrierungen mit einem Multiplier vom Typ Dumont 6363 (Außendurchmesser 3") und Probenschälchen von 5 cm Durchmesser durchgeführt worden waren, mußten für die neuen Plexiglasbehälter von 11,5 cm Durchmesser die Zählausbeuten für ^{210}Po , ^{226}Ra und ^{228}Th unter Berücksichtigung der verschiedenen Parameter (Remissionsvermögen und Mischungsverhältnis) neu bestimmt werden. Gegenüber den früher ermittelten Zählausbeuten für Plexiglasschälchen von 5,2 cm Außendurchmesser erhält man eine Verminderung der Ausbeute für die gesamte α -Strahlung von ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th + Folgeprodukte oder ^{210}Po , die je nach Mischungsverhältnis zwischen 10 und 15 % liegt. Für die Zählausbeute der ^{228}Th -Koinzidenzen beträgt die Ausbeuteverminderung etwa 20 % (siehe auch Seite 60). Diese Abnahme der Zählausbeute ist auf die veränderte Geometrie der Meßanordnung zurückzuführen. Da von der größeren Scheibe die ganze Fläche des Multipliers bedeckt wird, treten Zählratenverluste an den geringer empfindlichen Randzonen auf.

Zur Erreichung einer optimalen Verteilung von Knochenasche und $\text{ZnS}(\text{Ag})$ waren die Proben über eine bestimmte Zeit in der Reibschale zu mischen. Diese Mischzeit betrug bei den Probeschälchen von 5 cm Außendurchmesser, die eine Substanzmenge von 2,7 g enthielten, 5 Minuten. Die Probenmengen für die großen Schälchen von 11,5 cm Außendurchmesser wurden zunächst ebenfalls in 2,7 g Portionen (mit dem richtigen Mischungsverhältnis der einzelnen Partner) eingeteilt und jeweils 5 Minuten lang getrennt durchmischt. Die durch Zusammenfügen dieser Teilmengen erhaltene Probe wurde sodann gemessen. Als nächstes ist eine Probe in ihrer gesamten Menge Knochenasche und Zinksulfid 10 Minuten lang gemischt

worden (z.B. für ein Mischungsverhältnis 1,0 : 1,7 werden 5,2 g Knochenasche mit 8,84 g ZnS(Ag) verrührt). Dann wurde die Zählrate dieser Probe ermittelt. Andere Proben mit gleichem Mischungsverhältnis und derselben Gesamtmenge wurden 15 Minuten, 20 Minuten und 30 Minuten lang verrührt und die Impulsrate bestimmt. Ab 10 Minuten Mischzeit zeigte sich die Zählrate für die großen Proben als konstant und unabhängig von der weiteren Mischzeit. Sie stimmt überein mit der Zählrate, die man für die Proben erhält, die sich aus 5 verschiedenen Teilproben, jeweils 5 Minuten lang gerührt, zusammensetzen. Die Versuche zur Ermittlung der günstigsten Mischzeit wurden mit Knochenaschen von gleicher spezifischer ^{210}Po -Radioaktivität durchgeführt.

Für die endgültige Messung wurde zur Mischung der großen Substanzmengen eine Zeit von etwa 15 Minuten gewählt. Das bei den endgültigen Messungen benutzte Mischungsverhältnis von Knochenasche zu Zinksulfid betrug 1,0 : 1,7 und 1,8 : 0,9. Bei speziellen Fragen erwies es sich als günstig, außerdem noch Vergleichsmessungen mit dem Mischungsverhältnis 1,8 : 2,5 durchzuführen.

Vor der Messung des natürlichen Gehaltes α -strahlender Nuklide durchlief die Knochenasche den gleichen chemischen Präparationsprozeß, wie er auch für den Einbau der radioaktiven Nuklide bei der Bestimmung der Zählzelle verwendet wurde (siehe hierzu Kapitel 5. 7).

Damit ^{226}Ra und ^{228}Th im Gleichgewichtszustand mit ihren Folgeprodukten vorliegen, wurden die Knochensubstanzen erst drei Wochen nach Verschließen der Mischproben gemessen. Jede Aktivitätsbestimmung wurde 2 bis 3 mal wiederholt und der Berechnung dann ein Mittelwert aus diesen Einzelmessungen zugrundegelegt (Tabelle V, Anhang). Dabei war der Nulleffekt der elektronischen Anordnung sowie die Eigenverseuchung des Zinksulfids zu berücksichtigen (Tabelle V, Anhang). Der Einfluß der ZnS(Ag)-Eigenverseuchung hängt natürlich vom Mischungsverhältnis der jeweiligen Probe ab, wie in Kapitel 5. 6 ausführlicher diskutiert wurde (Tabelle 17).

Um den ^{210}Po -Gehalt der Knochenprobe für den Zeitpunkt der gesamten α -Strahlungsmessung zu bestimmen, wurde parallel zur

Mischmethodenmessung der ^{210}Po -Gehalt der gleichen Substanz nach der in Kapitel 3. 2 beschriebenen chemischen Bestimmungsmethode ermittelt. Die Messungen der auf dem Silberblech abgeschiedenen ^{210}Po -Menge mit Hilfe des kalibrierten Methandurchflußzählrohrs liefern die Anzahl ^{210}Po -Zerfälle pro Gramm Knochenasche, aus der mit Hilfe des Einengungsfaktors (Verhältnis chemisch behandelter Knochenasche zu natürlicher Knochenasche) und der Substanzmenge die in der Probe stattfindenden Zerfälle berechnet werden können (Tabelle V, Anhang).

Mit Hilfe der ^{210}Po -Zählausbeute bei der jeweils vorliegenden Remission ließ sich die der bekannten ^{210}Po -Aktivität entsprechende α -Impulsrate errechnen, die bei der Mischmethodenmessung zu erwarten war (Tabelle V, Anhang; Tabelle VI, Anhang; Tabelle VII, Anhang). Subtrahiert man diesen Wert von der gemessenen Gesamt- α -Impulsrate, so erhält man die der α -Aktivität des ^{226}Ra und des ^{228}Th sowie deren kurzlebigen Folgeprodukten zuzuschreibende Zählrate (Tabelle V, Anhang). Dabei wird natürlich vorausgesetzt, daß keine nennenswerte α -Strahlung von einem anderen radioaktiven Nuklid in der Knochenasche auftritt.

Der ^{228}Th -Gehalt der Knochenaschen ergab sich mit Hilfe der Koinzidenzmessung aufgrund des Doppelzerfalles von $\text{Tn} \rightarrow \text{ThA} \rightarrow \text{ThB}$. Die mit der Koinzidenzzeit von 0,32 sec gemessenen Koinzidenzen wurden zunächst mit den der Gesamt- α -Zählrate entsprechenden zufälligen Koinzidenzen sowie dem Nulleffekt korrigiert und daraus über die hier gültige Koinzidenzausbeute die ^{228}Th -Aktivität der Knochenasche unter Berücksichtigung des chemischen Einengungsfaktors errechnet (Tabelle VIII, Anhang). Dabei wurde vorausgesetzt, daß sich ^{228}Th mit seinen Folgeprodukten in radioaktivem Gleichgewicht befindet. In der Probe finden pro Zerfall eines ^{228}Th -Atoms dann insgesamt fünf α -Zerfälle statt. Über den Zählausbeutefaktor für die gesamte α -Strahlung der ^{228}Th -Zerfallsreihe kann man somit auch hier den vom ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten herrührenden Zählratenanteil berechnen. Subtrahiert man diesen Wert von dem vorher ermittelten Wert der gesamten α -Impulsrate der beiden Zerfallsreihen von ^{226}Ra und ^{228}Th , so bestimmt man die dem ^{226}Ra und seinen kurzlebigen Folgeprodukten zukommende Zählrate. Damit ist bei

bekanntem Ausbeutefaktor für die gesamte α -Aktivität des ^{226}Ra zunächst die α -Aktivität des ^{226}Ra und seiner Folgeprodukte bekannt (Tabelle VIII, Anhang). Da im radioaktiven Gleichgewicht auf jeden ^{226}Ra -Zerfall vier α -Zerfälle von Folgeprodukten kommen, muß man diesen Wert durch 4 dividieren, um die ^{226}Ra -Aktivität der Probe zu erhalten. Aus dieser errechnet sich mit Hilfe des chemischen Einengungsfaktors die ^{226}Ra -Aktivität pro Gramm Knochenasche (Tabelle 20). Die Meßergebnisse für verschiedene Knochenaschenmischungen von Femur- und Tibiaknochen sind in Tabelle 20 zusammengestellt (84) (85).

Zur Überprüfung des ^{226}Ra -Wertes wurde der ^{226}Ra -Gehalt der Knochenaschen auch nach der Emanationsmethode in einer Elektrometeranordnung mit zwei Ionisationskammern in Kompensationschaltung gemessen (siehe Kapitel 2). Die Übereinstimmung beider Resultate liegt innerhalb der Fehlergrenzen. Die Fehlerbreite der Emanationsmethode liegt für die hier gemessenen Aktivitätswerte bei $\pm 30\%$.

6. 1 Fehlerbetrachtung

Die Fehlergrenze der ^{226}Ra -Bestimmung nach der Mischmethode setzt sich aus folgenden Einzelfehlern zusammen :

1. der statistischen Schwankung der Zählrate bei der Messung der gesamten α -Strahlung mit einem mittleren Fehler von $\pm 5\%$.
2. dem statistischen Fehler bei der Messung des ZnS(Ag) -Null-effekts mit $\pm 15\%$.
3. der Unsicherheit der ^{210}Po -Aktivitätsbestimmung. Diese setzt sich aus dem Meßfehler und einem methodischen Fehler zusammen, der auf die chemische Präparationsmethode zurückzuführen ist. Der mittlere statistische Fehler der Impulsmessung beträgt $\pm 10\%$, der durch die Präparation verursachte Fehler $\pm 5\%$. Da zur Bestimmung des ^{226}Ra -Gehaltes die ^{210}Po -Zählrate von der gesamten α -Zählrate subtrahiert werden muß, ist auch noch die Unsicherheit der ^{210}Po -Zählausbeute von $\pm 10\%$ zu berücksichtigen. Der mittlere Gesamtfehler der ^{210}Po -Korrektur beläuft sich nach dem Gauss'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz dann auf $\pm 15\%$.

4. Die Koinzidenzmessung hat einen mittleren statistischen Fehler von $\pm 10\%$, die Unsicherheit der Zählausbeute für die ^{228}Th -Koinzidenzen beträgt $\pm 25\%$. Die Zählausbeute für die Gesamt- α -Aktivität der ^{228}Th -Zerfallsreihe schwankt um $\pm 15\%$. Diese Fehlereinflüsse summieren sich zu einem Gesamtfehler für die Bestimmung der Impulsrate von ^{228}Th und seiner Folgeprodukte von $\pm 31\%$.
5. Der Fehler der Zählausbeute für die gesamte α -Strahlung des ^{226}Ra , die zur ^{226}Ra -Bestimmung benötigt wird, betrug $\pm 10\%$.

Unter Verwendung aller einzeln oben angeführten Fehlerbreiten ergibt sich bei der Berechnung der ^{226}Ra -Aktivität der 22 Knochenproben ein mittlerer Fehler von $\pm 35\%$.

Diese Fehlerdiskussion gilt für die Messungen mit dem Mischungsverhältnis von Knochenasche zu Zinksulfid von 1,0 : 1,7 bzw. 1,8 : 0,9; verwendet man ein Mischungsverhältnis von 1,8 : 2,5, so erhält man bei der ^{226}Ra -Berechnung eine etwas größere Fehlerbreite, da die Fehler der Ausbeutewerte für alle drei betrachteten natürlichen Radionuklide infolge der größeren Unsicherheit bei der Remissionsmessung etwas größer sind (siehe Seite 79).

6. 2 Bestimmung des Verhältnisses von ^{228}Th zu ^{226}Ra und Diskussion der Meßergebnisse

Das natürlich radioaktive Nuklid ^{228}Th gelangt durch ein Radium-Isotop, das Isotop ^{228}Ra , in den menschlichen Knochen. Es erwies sich daher als sinnvoll, die gemessene ^{228}Th -Radioaktivität auf den ^{226}Ra -Gehalt des Knochens zu beziehen (74). Unter der Voraussetzung, daß zwischen ^{228}Ra und ^{228}Th ein radioaktives Gleichgewicht besteht, gibt dieser Quotient gleichzeitig das Verhältnis der beiden Radium-Isotope $^{228}\text{Ra} : ^{226}\text{Ra}$ im Knochen wieder (86). Bei den vorliegenden Messungen ergab sich ein Verhältnis ^{228}Th zu ^{226}Ra von 0,34 (Tabelle 20). (Die Werte, die in der Tabelle 20 mit einem Kreuz versehen sind, wurden bei dieser Mittelwertbildung nicht berücksichtigt.) Für den mittleren ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Knochenasche erhielten wir $(1,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-14}\text{c}$, für den mittleren ^{228}Th -Gehalt pro Gramm Knochenasche $(4 \pm 1) \cdot 10^{-15}\text{c}$.

Proben- Nummer	Emanationsmethode				Mischmethode [Knochenasche-ZnS (Ag)]				^{228}Th ^{226}Ra
	$^{226}\text{Ra/g}$				$^{228}\text{Th/g}$				
	Asche (10^{-14}c/g)	Frischgew. (10^{-15}c/g)	Calcium (10^{-14}c/g)	Asche (10^{-14}c/g)	Frischgew. (10^{-15}c/g)	Calcium (10^{-14}c/g)	Asche (10^{-14}c/g)	Frischgew. (10^{-15}c/g)	
1	1,5	4,6	4,0	2,1	6,3	5,6	0,6	1,8	0,28
2	2,2	6,1	6,0	2,2	6,1	5,9	0,6	1,7	0,27
3	1,2	4,0	3,2	1,3	4,3	3,5	0,7	2,3	0,54
4	1,5	4,6	4,0	1,4	4,2	3,8	0,1	0,3	0,07
5	0,7	2,3	1,9	1,1	3,7	3,0	0,5	1,7	0,45
6	0,7	1,8	1,9	0,7	1,8	1,9	0,4	1,1	0,57
7	2,6	6,7	7,0	2,5	6,5	6,7	0,7	1,8	0,28
8	1,2	3,0	3,2	0,9	2,4	2,4	0,4	1,0	0,45
9	0,9	2,7	2,4	0,9	2,7	2,4	0,1	0,3	0,10
10	1,2	3,4	3,3	1,3	3,7	3,6	0,4	1,1	0,31
11	2,8	7,6	7,7	2,9	7,8	8,0	2,9	7,8	1,00
12	3,0	7,5	7,9	2,4	6,1	6,3	0,4	1,0	0,17
13	1,0	2,7	2,7	0,7	1,8	1,9	0,1	0,3	0,14
14	0,4	1,2	1,1	0,8	2,4	2,1	0,3	0,9	0,38
15	2,5	6,1	6,8	2,2	5,5	6,0	2,2	5,5	1,00
16	1,3	3,3	3,5	1,3	3,3	3,6	0,5	1,3	0,38
17	1,3	3,9	3,5	1,2	3,6	3,3	0,2	0,6	0,17
18	0,9	2,3	2,4	1,0	2,6	2,7	0,5	1,3	0,50
19	0,8	2,1	2,1	1,3	3,3	3,5	0,8	2,1	0,62
20	0,8	1,6	2,2	1,6	3,3	4,4	1,6	3,3	1,00
21	1,0	2,0	2,7	1,1	2,0	3,0	0,5	0,9	0,45
22	1,0	2,4	2,7	1,2	2,9	3,3	0,3	0,7	0,25
Bei der Mittelwertbildung wurden die mit + bezeichneten Werte nicht berücksichtigt.									
	1,37	3,7	3,7	1,46	3,9	3,9	0,4	1,2	0,34
Mittelwerte aller Proben									
	1,37	3,7	3,7	1,46	3,9	3,9	0,7	1,8	0,42

Tabelle 20 Der natürliche ^{226}Ra - und ^{228}Th -Gehalt im menschlichen Knochen (Femur und Tibia)

Auch hier blieben bei der Berechnung die drei auffallend hohen ^{228}Th -Werte unberücksichtigt. Diese Ergebnisse stimmen innerhalb der Meßgenauigkeit gut mit den Resultaten von LUCAS, WALLACE, STEHNEY und ILCEWICZ (86) (87) überein, die bei der Bestimmung eine chemische Fällungsmethode benutzten.

Die drei höheren ^{228}Th -Werte wurden in Knochen gefunden, die zum Teil auch durch einen höheren ^{226}Ra -Gehalt ausgezeichnet waren. Es liegt daher die Annahme nahe, daß es sich hierbei um Knochen von Personen handelt, deren Nahrung einen hohen Gehalt an natürlich radioaktiven Nukliden aufwies. Berücksichtigt man bei der Mittelwertsbildung auch die hohen Werte, so erhält man ein Verhältnis $^{228}\text{Th} : ^{226}\text{Ra}$ von 0,42. Dieser Wert nähert sich dem von TURNER, RADLEY und MAYNEORD erhaltenen Quotienten von 0,65 (31). Als Mittelwert für ^{228}Th findet man $7 \cdot 10^{-15}\text{c}$ pro Gramm Knochenasche.

Die biologische Schwankung G_B der einzelnen Werte wurde aus der mittleren Abweichung der Einzelmessungen

$$G_{\text{ges.}} = \sqrt{\frac{\sum \epsilon_r^2}{n - 1}}$$

wobei ϵ_r die Abweichung der Einzelmessung vom Mittelwert ist und dem mittleren Meßfehler G_M errechnet. Es ist

$$(17) \quad G_B = \sqrt{G_{\text{ges.}}^2 - G_M^2}$$

Die biologische Schwankung und der mittlere Meßfehler des ^{226}Ra - und ^{228}Th -Gehaltes pro Gramm Knochenasche bzw. Knochengewebe ist in der Tabelle 21 zusammengestellt.

Werden die hohen ^{228}Th -Werte bei der Berechnung mitverwendet, so ergeben sich stattdessen mittlere biologische Schwankungen von 1,7 (mittlerer Meßfehler $\pm 0,5$) für die ^{228}Th -Aktivität pro Gramm Gewebe bzw. von 0,7 (mittlerer Meßfehler $\pm 0,2$) für den ^{228}Th -Gehalt pro Gramm Knochenasche.

	Emanationsmethode		Mischmethode			
	$^{226}\text{Ra/g Asche}$ (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra/g Frischg.}$ (10^{-15}c/g)	$^{226}\text{Ra/g Asche}$ (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra/g Frischg.}$ (10^{-15}c/g)	$^{228}\text{Th/g Asche}$ (10^{-14}c/g)	$^{228}\text{Th/g Frischg.}$ (10^{-15}c/g)
Mittelwert	1,37	3,7	1,46	3,9	0,4	1,2
Mittlerer Meßfehler	$\pm 0,4$	$\pm 1,1$	$\pm 0,5$	$\pm 1,4$	$\pm 0,1$	$\pm 0,3$
Mittlere biologische Schwankung	$\pm 0,4$	$\pm 1,5$	$\pm 0,4$	$\pm 1,4$	$\pm 0,2$	$\pm 0,5$

Tabelle 21 Mittlerer Meßfehler und mittlere biologische Schwankungs-
breite des ^{226}Ra - und ^{228}Th -Gehaltes menschlicher Knochen-
aschen

7 Bestimmung des ^{228}Th - und ^{232}Th -Gehaltes in
Gewebeproben von Thorotrastpatienten

Außerdem wurden nach der obigen Methode Gewebe- und Knochenproben von Thorotrastpatienten auf die Gesamtmenge an α -strahlenden Nukliden hin untersucht sowie deren ^{228}Th -Gehalt bestimmt. Die ^{228}Th -Aktivitäten der Aschenproben wurden gleichzeitig zum Vergleich gammaspektrometrisch über die γ -Strahlung des ^{228}Th -Folgeproduktes ^{208}Tl ($E_\gamma = 2,62 \text{ MeV}$) in einem Bohrlochkristall gemessen (88) (89). Da es sich hier um relativ große Aktivitäten handelte, kamen für die Mischungen meist nur Aschenmengen von einigen mg in Betracht, damit eine saubere Koinzidenzanalyse innerhalb des kalibrierten Bereichs möglich war. Diese Aschenproben von einigen mg sind in Salpetersäure und Salzsäure gelöst worden. Dann wurden zusätzlich die für die Mischmethode nötigen Mengen inaktiver Knochenasche in die Lösung gegeben. Die weitere Präparation der Substanz, die Vorbereitung der Proben sowie die Messung der Zählrate über einen Multiplier und Auswertung der Meßergebnisse unter besonderer Berücksichtigung der Remission erfolgte entsprechend den früheren Darlegungen. Die verschlossenen Proben wurden vor der Messung drei Wochen lang gelagert, damit sich ein Gleichgewicht zwischen ^{228}Th und dessen Folgeprodukten einstellen konnte. Die Mischungen bestanden aus 1,0 g Knochenasche und 1,7 g Zinksulfid. Der zur Messung verwendete Plexiglasbehälter hatte einen Innendurchmesser von 4,5 cm.

Mit Hilfe der bekannten Zählausbeuten für die ^{228}Th -Koinzidenzrate und die gesamte α -Rate des ^{228}Th konnte der Anteil an der gemessenen totalen α -Impulsrate errechnet werden, welche der gesamten α -Strahlung des ^{228}Th zukommt. Um auszuschließen, daß außer den α -strahlenden Nukliden der Thoriumreihe noch weitere α -strahlende Substanzen im Knochen vorhanden sind, deren Aktivität in einer vergleichbaren Größenordnung mit der ^{228}Th -Aktivität liegt, ist der ^{226}Ra - und ^{210}Po -Gehalt der Proben ermittelt worden. Die gemessenen Werte entsprachen dem normalen ^{226}Ra - bzw. ^{210}Po -Gehalt des jeweiligen Gewebes. Der Anteil der von diesen beiden Radionukliden herrührenden α -Impulsraten war deshalb stets so klein, daß er vernachlässigt werden konnte.

Aus diesen Gründen kann man annehmen, daß die mit der Mischmethode ermittelten α -Impulsraten nur auf die α -strahlenden Nuklide der Thoriumreihe zurückzuführen sind. Die Differenz zwischen der gemessenen Gesamt- α -Rate und der errechneten α -Rate von ^{228}Th und dessen Folgeprodukten stellt somit ein Maß für die ^{232}Th -Aktivität der Probe dar. Für die Berechnung des ^{232}Th -Gehaltes aus der auf obige Weise erhaltenen Impulsrate ist wegen der geringen α -Energie des ^{232}Th von 4,1 MeV die Zählausebeute von ^{210}Po zugrundegelegt worden. Bei der Beurteilung des somit erhaltenen ^{232}Th -Gehaltes ist allerdings zu berücksichtigen, daß der bei der Berechnung benutzte Anteil von ^{228}Th und dessen Folgeprodukten mit einem Fehler von $\pm 30\%$ (Kapitel 6. 1) behaftet ist. Bei der Differenzenbildung geht dieser Fehler voll in die Differenz (gesamte gemessene α -Impulsrate minus gesamte berechnete α -Impulsrate des ^{228}Th ist gleich der α -Impulsrate des ^{232}Th) ein und führt zu einer relativ hohen Unsicherheit des kleinen Wertes für den ^{232}Th -Gehalt. Daher ist diese Bestimmung des ^{232}Th -Wertes nur als Abschätzung zu betrachten, die die Größenordnung der vorhandenen ^{232}Th -Aktivität angeben soll.

Für Knochen und Weichgewebe ist dann jeweils das Verhältnis $^{232}\text{Th} : ^{228}\text{Th}$ ermittelt worden (Tabelle 22). Man sieht, daß der spezifische ^{232}Th -Gehalt des Knochens etwa halb so groß ist wie dessen spezifische ^{228}Th -Aktivität. Die im Gewebe gefundenen ^{232}Th -Werte pro mg Knochenasche liegen im Mittel etwa zwei- bis dreimal höher als die ^{228}Th -Werte.

Die Übereinstimmung der mit den beiden Meßmethoden (Mischmethode und gammaspektrometrische Bestimmungsmethode) ermittelten ^{228}Th -Aktivitätswerte liegt in den meisten Fällen innerhalb einer Schwankungsbreite von kleiner als $\pm 10\%$ und ist damit besser, als sich aufgrund der Einzelfehler beider Methoden erwarten läßt. In der Tabelle 22 sind die γ -spektrometrisch und mit der Mischmethode gewonnenen Ergebnisse einander gegenübergestellt.

Gewebe	Mischmethode			γ -Spektrometrie
	$^{232}\text{Th}/\text{mg Asche}$ (c/mg)	$^{228}\text{Th}/\text{mg Asche}$ (c/mg)	$^{232}\text{Th}/^{228}\text{Th}$	
Femur, ohne Knochenmark (Fall 1)	$1,2 \cdot 10^{-15}$	$2,4 \cdot 10^{-15}$	0,5	$3,6 \cdot 10^{-15}$
Wirbel, ohne Knochenmark (Fall 1)	$5,7 \cdot 10^{-14}$	$7,9 \cdot 10^{-14}$	0,7	$8,2 \cdot 10^{-14}$
Wirbel, ohne Knochenmark (Fall 2)	$2,8 \cdot 10^{-13}$	$4,0 \cdot 10^{-13}$	0,7	$3,2 \cdot 10^{-13}$
Sternum, ohne Knochenmark (Fall 2)	$1,0 \cdot 10^{-13}$	$1,7 \cdot 10^{-13}$	0,6	$1,7 \cdot 10^{-13}$
rippe, ohne Knochenmark (Fall 2)	$4,3 \cdot 10^{-14}$	$9,5 \cdot 10^{-14}$	0,5	$7,9 \cdot 10^{-14}$
Knochenmark (Fall 1)	$2,8 \cdot 10^{-13}$	$1,0 \cdot 10^{-13}$	2,8	---
Knochenmark (Fall 1)	$2,9 \cdot 10^{-13}$	$0,6 \cdot 10^{-13}$	4,8	$0,6 \cdot 10^{-13}$
Knochenmark (Fall 1)	$4,4 \cdot 10^{-13}$	$1,0 \cdot 10^{-13}$	4,4	$1,0 \cdot 10^{-13}$
Paravascuales Infiltrat (Fall 4)	$1,4 \cdot 10^{-11}$	$0,8 \cdot 10^{-11}$	1,8	$1,0 \cdot 10^{-11}$
Milz (Fall 2)	$2,8 \cdot 10^{-11}$	$2,5 \cdot 10^{-11}$	1,1	$2,4 \cdot 10^{-11}$
Milz (Fall 5)	$7,6 \cdot 10^{-11}$	$2,4 \cdot 10^{-11}$	3,2	$2,7 \cdot 10^{-11}$
Milz (Fall 6)	$3,8 \cdot 10^{-11}$	$2,6 \cdot 10^{-11}$	1,5	$2,3 \cdot 10^{-11}$
Leber (Fall 2)	$17,2 \cdot 10^{-12}$	$6,9 \cdot 10^{-12}$	2,5	$7,4 \cdot 10^{-12}$
Lymphknoten (Fall 4)	$1,6 \cdot 10^{-13}$	$0,6 \cdot 10^{-13}$	2,7	---

Tabelle 22 Der ^{232}Th - und ^{228}Th -Gehalt in Gewebeproben von Thorotrastpatienten

8 Über die Verteilung von radioaktiven Nukliden im Knochen

8. 1 Vorstellung über das Zustandekommen einer Gleichverteilung bei Dauerzufuhr von kleinsten Mengen radioaktiver Nuklide

Über die Verteilung von radioaktiven Nukliden bei einer Dauerzufuhr kleinster Mengen im Knochen ist bis jetzt sehr wenig bekannt. Die Frage, ob im Knochen eine gleichmäßige oder ungleichmäßige Verteilung vorliegt, wurde für ^{226}Ra an einigen Vergiftungsfällen, also einer einmaligen hohen Verabfolgung des radioaktiven Nuklids, studiert (12) (90) (91). Es wurde dabei festgestellt, daß in mikroskopischen Bereichen zum Teil starke Anreicherungen des radioaktiven Stoffes auftreten. Die Autoradiographien von Knochenschnitten zeigten, daß viele der α -Bahnsuren in sehr kleinen Büscheln und Ringen um die Haversschen Kanäle angeordnet waren. Diese Stoffwechselkanäle waren, wie die Mikroradiographien zeigten, umgeben von Ringen hoher Calcification (12). Während des ^{226}Ra -Einbaues in diese Zone hatte es sich jedoch um verkalkungsbereite Gebiete gehandelt, die im Aufbau begriffen waren. ENGELFELD, ENGSTROM und ZETTERSTROM haben für radioaktives ^{32}P gezeigt, daß die Knochenzonen, die den geringsten Mineralgehalt aufwiesen, die höchste ^{32}P -Aktivität hatten. Die Verteilung dieses ^{32}P war ähnlich den beobachteten "hot spots" bei ^{226}Ra (92).

Die für den Mineraltransport des Knochens verantwortlichen Zellen arbeiten nicht synchron. Daher ergibt sich, daß bei einer einmaligen Verabfolgung eines radioaktiven Nuklids gerade die Zone, die eben verknöcherungsbereit ist, also einen großen Bedarf an Mineralstoffen hat, den größten Anteil des radioaktiven Nuklids erhält. Die Verteilung des radioaktiven Stoffes findet im wesentlichen innerhalb der verknöcherungsbereiten Zonen statt. Dadurch wird eine Anreicherung des radioaktiven Stoffes in sehr kleinen Bereichen des Knochens hervorgerufen; es kommt zur Bildung von "hot spots". Das bei ^{32}P und ^{226}Ra nachgewiesene Verhalten wurde ebenfalls bei Vergiftungsfällen mit ^{90}Sr bestätigt. Es zeigten sich auch hier Anreicherungen der Radioaktivität in den Haversschen Systemen. Obwohl das Verhältnis im Mineralgehalt

zwischen altem und neuem sich bildendem Haversschen System etwa 1,5 : 1 ist, kann das Verhältnis der Aktivität eines Nuklids zwischen altem und neuem System 1 : 10 oder sogar 1 : 20 betragen (93).

Eine ^{90}Sr -Anreicherung ist aus dem vorher Gesagten erklärlich; der große Bedarf an Mineralstoffen in den verknöcherungsbereiten Gebieten wird bei einer hohen spezifischen Blutaktivität von ^{90}Sr zu einer hohen spezifischen ^{90}Sr -Aktivität im neu gebildeten Knochen führen. Da sich in dem spongialen Bezirk des Knochens die meisten Aufbauzonen befinden, ist die Aktivität von ^{90}Sr pro cm^3 Knochengewebe der Spongiosa höher als im kompakten Knochen. Ebenso zeigt sich in der Wachstumszone eine bevorzugte Ablagerung des ^{90}Sr (93).

Diese bis jetzt besprochenen Fälle sind an Tieren untersucht worden, denen eine einmalige Gabe eines radioaktiven Nuklids verabreicht wurde. Es ist fraglich, ob bei einer kontinuierlichen Dauerzufuhr von kleinsten Mengen sich wie bei den Vergiftungsfällen an bestimmten Stellen im Knochen starke Anreicherungen der entsprechenden radioaktiven Stoffe ausbilden. Eine Übertragung des oben beschriebenen Modells für die Entstehung der "hot spots" bei einem Vergiftungsfall auf eine Dauerzufuhr von kleinsten Mengen würde zur Annahme einer gleichmäßigen Verteilung des entsprechenden radioaktiven Nuklids im Knochen führen. Zu jeder Zeit ist stets eine bestimmte Anzahl verknöcherungsbereiter Zonen zur Aufnahme des radioaktiven Stoffes bereit, und es wird sich daher im Laufe der Zeit eine gleichmäßige Verteilung ausbilden. Eine autoradiographische Aufnahme von VAN DILLA an Knochen von Hunden, denen vorher ^{228}Th -Lösung injiziert worden war, ergab, daß ^{228}Th in Form von "hot spots" vorlag. Diese Depots von ^{228}Th waren durch vereinzelte, stark ausgebildete Sterne in der Photoemulsion gut erkennbar. Außerdem sah man über den Knochenschnitt gleichmäßig verteilte zwei- bis dreispurige Sterne. VAN DILLA deutete dieses Verhalten so, daß das in den ^{228}Th -Depots sich bildende ^{224}Ra in vivo austritt und sich wie bei einer Radium-Dauerzufuhr gleichmäßig im Körper verteilt (94). Die einige Wochen später vorgenommene Aufnahme zeigt, daß das ^{224}Ra in vitro offenbar nicht aus den Depots

wegwandert, es sind nur noch die ausgeprägten 228 -Depots zu sehen (94).

8. 2 Die Verteilung natürlich α -strahlender Nuklide im Knochen für normal vorhandene Radioaktivitätskonzentrationen

Um die Ergebnisse von VAN DILLA auch für natürlicherweise vorhandene Radioaktivitäten zu bestätigen, wurden von Teilen eines Rentierknochens Autoradiographien mit verschiedenen Belichtungszeiten angefertigt. Hierzu wurden Ilford C_2 Kernspurplatten, die sich speziell für die Autoradiographie von α -Teilchen eignen, benutzt. Da eine lange Expositionszeit benötigt wurde, waren besondere Maßnahmen nötig, um das Fading der Bahnspuren auf der Platte zu verhindern. Unter Fading versteht man den Verlust an Körnern in älteren, latenten Spuren gegenüber gleichartigen, frischen Spuren. Bei langen Expositionszeiten kann dieser Effekt zur Löschung der Spuren führen. Ist die Feuchtigkeit konstant, dann nimmt dieser Effekt exponentiell mit der Temperatur zu, bei konstanter Temperatur steigt er exponentiell mit der Feuchtigkeit an (95). Stickstoff wirkt um den Faktor 10 weniger regressionsfördernd als Sauerstoff. Die mit der Photoplatte belegten, gut getrockneten Knochenstücke wurden daher im Kühlschrank in Stickstoff-gefüllten Behältern aufbewahrt, um das Fading so weit wie möglich herabzudrücken.

Damit zwischen Knochenschnitt und Kernspurplatte keine chemischen Reaktionen stattfinden können, wurde der vorher ausgetrocknete, etwa 10 mm dicke Knochenschnitt mit einem Gelatinefilm überzogen. Die Stärke des Films betrug etwa $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Sie war also klein gegen die Reichweite der α -Teilchen. Dieser Gelatineüberzug wurde durch Eintauchen des Knochens in einer Chromalaun-Gelatine-Lösung folgender Zusammensetzung erzeugt : 5 g Gelatine, 0,5 g Chromalaun, 10 g Phenol, 1000 ml Aqua dest.

Zur Belichtung der autoradiographischen Aufnahmen wurden Zeiten von 68, 150 und 320 Tagen gewählt. Es wurden drei verschiedene Rentierknochenstücke untersucht. Ein Stück wurde der Wachstumszone entnommen, ein zweites der Knochengelenkkappe. Ein dritter

Knochenschnitt stammte aus dem Knochenschaft. Damit keine Verwechslungen beim Auszählen stattfanden, wurde der Umriss jedes Knochenstückes durch Anritzen der photoempfindlichen Schicht mit einer Nadel auf die Platte übertragen. Um Verschiebungen zu vermeiden, sind die einzelnen Knochenschnitte auf der Platte mit Klebstreifen befestigt worden. Der Behälter zur Aufbewahrung der Knochenstücke während der Exposition war auf der Innenseite mit einer 100 μ dicken Aluminiumschicht bedampft, deren Gehalt an α -strahlenden Nukliden sehr gering war (weniger als $5 \cdot 10^{-14}$ ^{226}C Ra/g). Der Behälter war während der gesamten Expositionszeit luftdicht verschlossen und wurde alle 4 bis 5 Tage mit gealtertem, radonfreiem Stickstoff gefüllt.

Nach Beendigung der Expositionszeit wurde die Photoplatte mit Hilfe von Agfa Final 10 Minuten entwickelt, 1/2 Minute einem Stopppbad (3%ige Essigsäure) ausgesetzt und im sauren Fixierbad fixiert, dann gewässert und getrocknet.

Die auf der Photoplatte auszuzählenden, belichteten Flächen waren entsprechend den einzelnen Knochenscheiben zwischen 1 und 3 cm^2 groß. Die α -Bahns Spuren sind mit einem Mikroskop ausgezählt worden. Das Gesichtsfeld des Mikroskops hatte einen Durchmesser von 300 μ . Nach Beendigung der Auszählung wurden die Spuren pro Gesichtsfeld addiert und ihr Mittelwert gebildet. Jeweils zwei Kontrollplatten pro Belichtung wurden mitentwickelt und ebenfalls ausgezählt. Für das Knochengelenkstück betrug der Mittelwert bei einer Belichtungszeit von 68 Tagen, abzüglich des Nullwertes der Kernspurplatte, 0,7 Bahns Spuren/Gesichtsfeld. Für die Wachstumszone ergab sich bei 150 Tagen bei zwei Messungen jeweils ein Wert von 1,5 Bahns Spuren/Gesichtsfeld. Bei 320 Tagen wurde für den Knochenschaft ein Mittelwert von 3,0 Bahns Spuren/Gesichtsfeld gemessen, für 68 Tage ergab sich ein Wert von 0,7 Bahns Spuren/Gesichtsfeld (Tabelle 23).

Die α -Aktivität des Knochenmarks von Schaft und Wachstumszone ist ebenfalls bestimmt worden. Es zeigte sich eine geringere Anzahl α -Bahns Spuren pro Gesichtsfeld als beim kompakten Knochen. Für eine Expositionszeit von 68 Tagen wurden 0,4 Bahns Spuren/Gesichtsfeld gefunden, für 150 Tage 0,9 Bahns Spuren/Gesichtsfeld und für 320 Tage 2,0 Bahns Spuren/Gesichtsfeld.

Betrachteter Knochenanteil	Knochnschnitt	Zahl der ausgezählten Spuren pro Gesichtsfeld des Mikroskops ($0,07 \text{ mm}^2$)	Mittlere Schwankungsbreite der Spurenzahl	Expositionszeit (d)	Aus der Anzahl der Spuren berechnete Aktivität (10^{-12} c/g)	$^{210}\text{Po/g}$ Frischg. (auf chemischem Wege bestimmt) (10^{-12} c/g)
Kompakter Knochen	Knochen-gelenk	0,7 0,6	$\pm 0,40$ $\pm 0,35$	68 68	3,2 2,7	3,6
	Wachstumszone	1,4 1,6	$\pm 0,60$ $\pm 0,65$	151 151	2,9 3,3	
	Schaft	2,5 3,0	$\pm 0,70$ $\pm 0,85$	320 320	2,4 2,9	
	Schaft	0,7	$\pm 0,40$	68	3,2	
	Wachstumszone	1,0 0,8	$\pm 0,50$ $\pm 0,40$	151 151	3,0 2,4	
	Schaft	2,0 2,0	$\pm 0,60$ $\pm 0,60$	320 320	2,9 2,9	
Knochenmark	Schaft	0,4	$\pm 0,30$	68	2,7	3,2

Tabelle 23 Ergebnis der autoradiographischen Untersuchungen von Teilen des Rentierknochens im Vergleich zur auf chemischem Wege bestimmten ^{210}Po -Aktivität

An keiner Stelle konnten Anhäufungen von α -Bahns Spuren ("hot spots") beobachtet werden. Die Zahl der pro Gesichtsfeld gefundenen α -Bahns Spuren lag stets innerhalb der berechneten mittleren Fehlerbreite (Tabelle 23). Auch diffuse Ansammlungen von α -Bahns Spuren für bestimmte Knochenbezirke konnten nicht festgestellt werden. Aus diesen Ergebnissen kann man schließen, daß eine völlige Gleichverteilung der α -strahlenden Nuklide in den untersuchten Knochenbereichen vorlag. Die Umrechnung der gezählten α -Spuren in die Anzahl der pro Zeiteinheit und pro Gramm Knochen stattfindenden Zerfallsakte geschieht mit Hilfe der Gleichung 18 (96) :

$$(18) \quad A = \frac{4 \cdot \text{Anzahl der } \alpha\text{-Spuren (T)}}{\text{Fläche (F)} \cdot \text{Reichweite (R)}} \cdot \frac{1}{\alpha\text{-Teilchen pro Zerfall}} \cdot \frac{1}{\text{Zeit (t)}}$$

Für ^{226}Ra ergibt sich bei einer angenommenen Retention von 30 % für das Radon und seine kurzlebigen Folgeprodukte und für eine durchschnittliche Reichweite von $6,3 \text{ mg/cm}^2$ (96) A zu :

$$(19) \quad A = 10,05 \cdot \frac{T}{F \cdot t} \mu\mu c \text{ } ^{226}\text{Ra/g}$$

Hierin ist T die Anzahl der α -Spuren innerhalb der Fläche F und t die Expositionszeit in Tagen. Die Fläche F wird in mm^2 angegeben. Wird ein vollständiges Entweichen des Radons angenommen, dann gilt die Gleichung 20 :

$$(20) \quad A = 19,85 \cdot \frac{T}{F \cdot t} \mu\mu c \text{ } ^{226}\text{Ra/g}$$

Um den Anteil der α -Bahns Spuren, die von dem ^{226}Ra - und ^{228}Th -Gehalt des Rentierknochens herrühren, abschätzen zu können, wurden diese Aktivitäten gesondert bestimmt. Die ^{226}Ra -Aktivität des Rentierknochens wurde mit Hilfe der Emanationsmethode (siehe Kapitel 2) gemessen. Es ergab sich ein Mittelwert von $8 \cdot 10^{-14} c$ ^{226}Ra pro Gramm Knochensubstanz. Die dieser Aktivität entsprechende Anzahl von Spuren bei einer Expositionszeit von 300 Tagen und einer Gesichtsfäche von $F = 0,07 \text{ mm}^2$ ist nach Gleichung 19 nicht höher als 0,16 Spuren/Gesichtsfeld. Das bedeutet, daß die ^{226}Ra -Aktivität nur einen sehr kleinen Anteil an der gesamten

α -Aktivität ausmacht. Die ^{228}Th -Aktivität des Rentierknochens ist über die Messung der α -Koinzidenzen mit Hilfe der Mischmethode bestimmt worden. Sie beträgt etwa $3 \cdot 10^{-14} \text{ c}$ pro Gramm Knochen. Analog der oben angegebenen Gleichung 19 für ^{226}Ra erhält man für ^{228}Th unter der Annahme, daß in vitro während der Autoradiographie kein Thoron aus dem Knochen entweicht, die folgende Beziehung :

$$(21) \quad A = 3,3 \cdot \frac{T}{F \cdot t} \mu \mu \text{ c } ^{228}\text{Th/g}$$

Für die Berechnung der ^{228}Th -Aktivität im Knochen wurde die durchschnittliche Reichweite für ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten über das von SPIERS angegebene Verhältnis der α -Teilchen-Reichweiten in weichgewebe und Knochen von 1,36 (97) ermittelt. Die durchschnittliche Spurenlänge von ^{228}Th und seinen Folgeprodukten beträgt in einem Stoff der Dichte 1 g/cm^3 52 μ (98). Für eine Dichte des Knochens von 2 g/cm^3 erhält man dann eine Reichweite von $7,6 \text{ mg/cm}^2$. Bei einer Expositionszeit von 300 Tagen sind nach Gleichung 21 etwa 0,15 Spuren vom ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten pro Gesichtsfeld zu erwarten.

Die bei der Autoradiographie gemessene Spurenanzahl ist daher praktisch nur durch den Zerfall des ^{210}Po bedingt, das, wie bereits gezeigt (siehe Kapitel 3), um eine Größenordnung höher im Rentierknochen konzentriert ist als ^{226}Ra und ^{228}Th . Da die Rentierknochen vor den autoradiographischen Untersuchungen etwa 1,5 Jahre alt waren und Expositionszeiten bis zu einem Jahr gewählt wurden, entspricht die gemessene ^{210}Po -Aktivität dem ^{210}Pb -Gehalt der Knochen. Die Berechnung der ^{210}Po -Aktivität aus der Anzahl der gezählten α -Bahns Spuren erfolgt wieder nach Gleichung 18.

Die Reichweite der α -Strahlung des ^{210}Po beträgt nach LEA (98) in einem Material der Dichte von 1 g/cm^3 39 μ . Bei der Auswertung der gemessenen Radioaktivitäten der Marksicht wird daher mit $3,9 \text{ mg/cm}^2$ gerechnet. Für den Knochen berechnet sich über das Verhältnis der Reichweiten in Weichgewebe und Knochen von 1,36 die Spurenlänge der 5,3 MeV α -Teilchen zu 29 μ , bei einer Dichte des Knochens von $\rho = 2 \text{ g/cm}^3$ erhält man eine Reichweite

von $5,8 \text{ mg/cm}^2$. Für ^{210}Po ergibt sich somit aus Gleichung 18 für $F = 0,07 \text{ mm}^2$ und $R_{\text{Kn}} = 5,8 \text{ mg/cm}^2$ die Gleichung 22 :

$$(22) \quad A = 0,309 \cdot \frac{T}{t} \cdot 10^{-9} \text{ c/g}$$

Hierbei ist wieder T die Anzahl der Spuren pro Gesichtsfeld abzüglich des Nulleffektes der Kernspurplatte und t die Expositionszeit in Tagen. Für Marksubstanz erhält man für eine Reichweite von $R = 3,9 \text{ mg/cm}^2$ die Beziehung :

$$(23) \quad A = 0,459 \cdot \frac{T}{t} \cdot 10^{-9} \text{ c/g}$$

Mit Hilfe dieser Formel wurden die α -Aktivitäten für Knochen und Knochenmark des Rentierknochens berechnet und in Tabelle 23 zusammengestellt.

Zusätzlich wurde anschließend an diese autoradiographischen Aktivitätsmessungen der ^{210}Po -Gehalt der Knochenstücke mit Hilfe der chemischen Bestimmungsmethode für Polonium (Kapitel 3) ermittelt. Die gemessene Radioaktivität beträgt für den kompakten Knochen $3,6 \cdot 10^{-12} \text{ c/g}$ Knochen. Der ^{210}Po -Gehalt des Knochenmarks ergab sich zu $3,2 \cdot 10^{-12} \text{ c/g}$ Knochenmark. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung dieser Werte mit den auf autoradiographischem Wege ermittelten ^{210}Po -Aktivitäten (siehe Tabelle 23).

Bezieht man die gemessene ^{210}Po -Aktivität auf 1 g Knochenasche, so erhält man für den kompakten Knochen einen Wert von $6,5 \cdot 10^{-12} \text{ c/g}$ Asche und für das Knochenmark eine Aktivität von $15 \cdot 10^{-12} \text{ c/g}$ Asche. Daraus ersieht man, daß der ^{210}Po -Gehalt pro Gramm Asche für das Knochenmark mehr als doppelt so hoch ist wie für die Knochensubstanz.

9 Die natürliche Strahlenbelastung des Menschen

9. 1 Bestimmung der Dosisleistung der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide im Gewebe des Menschen

9. 1. 1 Dosisleistung der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide im menschlichen Knochen

Aus den Untersuchungen über die Verteilung radioaktiver Nuklide bei einer Dauerzufuhr kleinster Mengen im Knochen von Rentieren kann geschlossen werden, daß eine Anreicherung der einzelnen natürlich radioaktiven Substanzen in sogenannten "hot spots" auch beim Menschen nicht auftritt. Für die Berechnung der Dosis ist daher eine gleichmäßige Verteilung der verschiedenen natürlich radioaktiven Nuklide sowohl im kompakten Knochen als auch im Knochenmark vorausgesetzt worden.

Bei einer Gleichverteilung der Radionuklide ohne Berücksichtigung spezieller geometrischer Gegebenheiten innerhalb des Knochens kann die Dosisleistung mit Hilfe der Formel 24 berechnet werden (35) (100) :

$$(24) \quad D_{\alpha} = 51,15 \cdot c \sum n_{\nu} \cdot E_{\nu} \text{ rad/Tag}$$

In dieser Gleichung ist c die Aktivität in $\mu\text{C/g}$ Gewebe und E_{ν} die Energie der α -Strahlung in MeV, n_{ν} ist die Anzahl der α -Zerfälle pro Radium- bzw. Thorium-Zerfall.

Eine Abschätzung der mittleren Strahlenbelastung im Knochen des Menschen wurde auf Grund der gemessenen Werte von ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po (Kapitel 2, 3 und 6) nach Gleichung 24 errechnet und in Tabelle 24 zusammengestellt. Bei der Berechnung der Strahlendosis des ^{228}Th ist angenommen worden, daß die durch Zerfall des ThX gebildete Thoronemanation vollständig am Entstehungsort zerfällt (101). Der Ausdruck $\sum n_{\nu} \cdot E_{\nu}$ beträgt dann 32,1. Für die Retention des Radons im Knochen wird bei der ^{226}Ra -Dosisberechnung ein Wert von 30 % angenommen (35). Unter Berücksichtigung der kurzlebigen, α -strahlenden Folgeprodukte des Radons

ergibt sich : $\sum n_r \cdot E_r = 4,8 + 0,3 (5,5 + 6,0 + 7,7) = 10,56$

Strahlenquelle	Bemerkungen	Aktivität/g Frischgew. (10^{-15} c/g)	Dosisleistung D_a [mrads/a]
^{226}Ra (+ 30% kurzlebige Folgeprodukte)	Einengungsfaktor		
	$\frac{\text{Knochen}}{\text{Asche}} = 2,5$	5,0	1,0
	$\frac{\text{Knochen}}{\text{Asche}} = 3,0$	4,0	0,8
^{228}Th (+ 100% Folgeprodukte)	Mittelwert für kompakten Knochen	1,4	0,8
^{210}Po	Mittelwert für kompakten Knochen	31,0	3,1
	Mittelwert für Knochenmark	31,0	3,1

Tabelle 24 Mittlere Strahlenbelastung des menschlichen Knochens für gleichmäßig verteilte α -strahlende Nuklide

Im folgenden soll die Dosisbelastung des Weichgewebes innerhalb der Knochencavities berechnet werden, die durch die in den kompakten Knochenzonen vorhandene Radioaktivität der α -strahlenden Nuklide verursacht wird. Eine solche Dosisabschätzung ist für verschiedene Durchmesser der Knochenhöhlungen durchzuführen, da man zwischen den Haversschen Kanälen, den Osteozyten und den noch kleineren Canaliculi unterscheiden muß. Diese kleinen Gebilde aus Weichgewebe, die stets von der mineralhaltigen Knochen- substanz umgeben sind, können als die kritischen Organe im Kno- chen betrachtet werden, und es ist deshalb erforderlich, die Strahlenbelastung dieser kritischen Zonen gesondert zu bestimmen.

Ist die Verteilung der α -strahlenden Substanzen in der kompak- ten Knochensubstanz gleichmäßig, so kann nach SPIERS (97) (102) (103) die Dosis $D_{K/W}$ in einem Punkt P des in einer Knochenhöh- lung eingeschlossenen Weichgewebes mit Hilfe der Formel 25 be- rechnet werden :

$$(25) \quad D_{K/W} = \frac{N \cdot E}{S'} \cdot \bar{F}$$

Der Anteil des sich im Weichgewebe der Höhlung befindenden Radons wird bei dieser Berechnung nicht berücksichtigt. Weiterhin wurde der spezifische ^{226}Ra -, ^{228}Th - und ^{210}Po -Gehalt des in den Knochenhöhlungen befindlichen Weichgewebes nicht in die Berechnung einbezogen. Bei der Berechnung der Dosisbelastung für an den Knochen angrenzende Markschichten kann allerdings der ^{210}Po -Gehalt des Knochenmarks nicht außer acht gelassen werden, da die gemessene ^{210}Po - (bzw. ^{210}Pb -) Aktivität pro Gramm Knochenmark mit der spezifischen ^{210}Po - (bzw. ^{210}Pb -) Aktivität des Knochens vergleichbar ist. Eine Berechnung der Dosis innerhalb einer Markschicht ohne Berücksichtigung der Eigenaktivität des Knochenmarks ergibt dann die zusätzliche Dosisbelastung dieser Schicht durch die in der Knochenwand vorliegende ^{210}Po -Aktivität.

Die ^{226}Ra -Aktivität des reinen Marks bezogen auf 1 g Frischgewicht liegt in der Größenordnung der ^{226}Ra -Aktivität des normalen menschlichen Weichgewebes (48). Ein ähnliches Verhalten kann auch für ^{228}Th angenommen werden (99). Aus diesem Grund ist bei der Berechnung der Dosisbelastung einer Markschicht durch die natürlichen Radionuklide ^{226}Ra und ^{228}Th die Eigenaktivität des Marks für diese Nuklide vernachlässigt worden.

In Formel 25 ist $\mathcal{S}'$ das Verhältnis der Reichweiten der α -Teilchen in Weichgewebe und Knochen $\mathcal{S}' = 1,36$, E die Energie der α -Teilchen und N die Anzahl der α -Zerfälle, die pro sec und pro cm^3 stattfinden. $\bar{F}$ ist eine geometrische Größe, die von dem Durchmesser, der Form des betrachteten Knochenhohlraumes und der Reichweite der α -Teilchen abhängt (97) (102). Sie wird als mittlerer Geometriefaktor bezeichnet. Für sehr kleine Durchmesser der Knochenhohlräume nähert sich $\bar{F}$ dem Wert 1, man erhält dann

$$(26) \quad D_{K/W} = \frac{N \cdot E}{\mathcal{S}'}$$

Außer von SPIERS wurden auch von CHARLTON und CORMACK sowie von KONONENKO Berechnungen des mittleren Geometriefaktors $\bar{F}$ für die Reichweite der α -Teilchen des ^{226}Ra und dessen Folgeprodukte durchgeführt (104) (105). Für die Cavities des Haversschen Systems wurde zur Berechnung der $\bar{F}$ -Werte ein zylindrischer Hohlraum

angenommen (104). Zur Ermittlung der Dosis in den Markschi-
chten ist für eine Markschiicht mit angrenzender Knochenschicht
der Wert $\bar{F}$ errechnet worden (97) (104).

In der vorliegenden Arbeit wurden für ^{226}Ra die Werte für $\bar{F}$
von CORMACK und CHARLTON benutzt. Mit der von diesen Autoren
angegebenen Methode wurden für die Zwecke der vorliegenden
Arbeit außerdem die Werte $\bar{F}$ auch für die natürlich radioaktiven
Nuklide ^{228}Th und ^{210}Po ermittelt (siehe Tabelle 25).

Betrachtetes Gewebe	Durchmesser der Knochenhöhlung und Dicke der Markschiicht [μ]	$\bar{F}$ für ^{226}Ra $\bar{R} = 44 \mu$	$\bar{F}$ für ^{228}Th $\bar{R} = 52 \mu$	$\bar{F}$ für ^{210}Po $\bar{R} = 39 \mu$
Haverssches System:				
Canaliculi	0 μ 1 μ	1,00 0,99	1,00 0,99	1,00 0,98
Osteozyten	5 μ 10 μ	0,96 0,90	0,97 0,93	0,95 0,89
Haverssche Kanäle	20 μ 50 μ	0,80 0,50	0,87 0,60	0,78 0,48
Für eine an den Knochen angrenzende Markschiicht von einer Dicke d in μ	0 - 10 μ 0 - 20 μ 0 - 40 μ	0,36 0,28 0,17	0,38 0,31 0,20	0,35 0,27 0,16

Tabelle 25 Mittlere Geometriefaktoren $\bar{F}$ berechnet für
die durchschnittlichen Reichweiten der α -
Teilchen von ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th +
Folgeprodukte und ^{210}Po

Die zur Berechnung notwendigen Reichweiten der α -Teilchen für
 ^{210}Po und ^{228}Th im Weichgewebe betragen nach LEA (96) für ^{210}Po
39 μ und für ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten
52 μ (bestimmt für die mittlere Energie der α -Teilchen von
 ^{228}Th und seinen Folgeprodukten). Mit Hilfe dieser $\bar{F}$ -Werte wur-
den nach den Gleichungen 25 und 26 für die Radioaktivitäten pro
Gramm kompaktem Knochen von ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po die Gewebe-
dosisleistungen ermittelt :

$$(27) \quad D_{K/W} = \frac{51,15 \cdot 1,85}{1,36} \cdot c \cdot \sum n_r \cdot E_r \cdot \bar{F} = 69,6 \cdot c \cdot \sum n_r \cdot E_r \cdot \bar{F} \text{ rad/d}$$

$\sum n_r \cdot E_r$ beträgt 10,56 für ^{226}Ra und 30 % seiner kurzlebigen Zerfallsprodukte und 32 für ^{228}Th im radioaktiven Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten. Im Falle des ^{210}Po ist $\sum n_r \cdot E_r = 5,3$; c ist die spezifische Aktivität des radioaktiven Nuklids in μc pro Gramm kompaktem Knochen. Für die Dichte des Knochens wurde nach SPIERS ein Wert von $1,85 \text{ g/cm}^3$ gewählt (97).

In der Tabelle 26 sind die für die einzelnen Knochenbezirke nach Gleichung 27 berechneten Dosisleistungen zusammengestellt.

Betrachtetes Gewebe	Durchmesser der Knochenhöhlung und Dicke der Markschrift [μ]	Gewebedosis $D_{K/W}$ von ^{226}Ra [mrads/a] für $5 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ u. $4 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$		Gewebedosis $D_{K/W}$ von ^{228}Th [mrads/a] für $1,2 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$	Gewebedosis $D_{K/W}$ von ^{210}Po [mrads/a] für $3,1 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$
Haversches System:					
Canaliculi	0	1,34	1,07	0,98	4,20
	1	1,33	1,06	0,96	4,10
Osteozyten	5	1,30	1,03	0,94	3,95
	10	1,20	0,96	0,90	3,71
Haversche Kanäle	20	1,10	0,87	0,84	3,26
	50	0,70	0,53	0,58	2,00
Für eine an den Knochen angrenzende Markschrift von einer Dicke d in μ	0 - 10	0,48	0,38	0,37	1,45
	0 - 20	0,37	0,30	0,30	1,12
	0 - 40	0,23	0,18	0,20	0,67

Tabelle 26 Mittlere Dosisleistungen durch die α -Strahlung der natürlichen Radionuklide ^{226}Ra + Folgeprodukte, ^{228}Th + Folgeprodukte und ^{210}Po in mrads/a in Knochenhöhlungen und Markschriften verschiedener Größe

Diese Berechnungen wurden mit einem mittleren spezifischen ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm kompaktem Knochengewebe von 5 bzw. $4 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ (entsprechend dem gewählten Einengungsfaktor), einem ^{228}Th -Gehalt von $1,2 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ und einem ^{210}Po -Gehalt von $3,1 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ durchgeführt.

Es zeigt sich, daß die Strahlendosis für ^{210}Po für alle Knochenbereiche etwa 4 mal größer ist als der für ^{226}Ra und 30 % der Folgeprodukte errechnete Wert und daß die für ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten errechnete Dosisleistung etwa gleich der für ^{226}Ra und dessen Folgeprodukte ist.

9. 1. 2 Dosisleistung der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide im menschlichen Weichgewebe

Die mittlere Dosisleistung, die durch die α -Strahlung von ^{226}Ra , ^{228}Th sowie deren Folgeprodukte und ^{210}Po im Weichgewebe des menschlichen Körpers entsteht, errechnet sich nach Gleichung 24. In Tabelle 27 sind die Dosisleistungen der α -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po angegeben. Die spezifische ^{228}Th -Aktivität des Gewebes wurde rechnerisch ermittelt. Dabei ist analog zu ^{226}Ra angenommen worden, daß im Weichgewebe der ^{228}Th -Gehalt ebenfalls nur etwa 20 % des Gesamtkörper-Wertes von ^{228}Th beträgt (99). Für den Standardmenschen von 70 kg Gewicht errechnet sich somit für einen ^{228}Th -Gehalt von $0,4 \cdot 10^{-14} \text{ c}$ pro Gramm Knochenasche ein ^{228}Th -Gehalt des Gesamtkörpers von $14 \mu\text{c}$, wenn man für das Aschengewicht des Skeletts 2800 g annimmt. Die ^{228}Th -Aktivität des Weichgewebes beträgt dann $0,44 \cdot 10^{-16} \text{ c}$ pro Gramm Frischgewicht.

Als ^{210}Po -Aktivität des Weichgewebes wurde ein repräsentativer Mittelwert von $0,3 \cdot 10^{-14} \text{ c/g}$ Frischgewicht gewählt, der aus den in Tabelle 13 zusammengestellten Messungen ermittelt wurde. Für den spezifischen ^{226}Ra -Gehalt des Gewebes ist im Mittel ein Wert von $1 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Frischgewicht zugrundegelegt worden (siehe Tabelle 5).

Die Dosisleistung der α -Strahlung des ^{226}Ra wurde für eine Radonretention von 30 % und für den Fall, daß die Menge Radon,

Strahlenquelle	Aktivität/g Frischg. (10^{-16} c/g) (Mittelwerte)	Dosisleistung [mrad/a]
^{226}Ra (+30% kurzlebige Folgeprodukte)	1,0	0,02
^{226}Ra (+ 100% kurzlebige Folgeprodukte)	1,0	0,05
^{228}Th (+ 100% Folge- produkte)	0,4	0,03
^{210}Po	30,0	0,3

Tabelle 27 Mittlere Strahlenbelastung des Weichgewebes
für gleichmäßig verteilte α -strahlende Nuklide

die vom Weichgewebe entweicht, durch die Radonzufuhr aus der Atemluft ausgeglichen wird, berechnet. Für diese Annahme gilt der Ausdruck $\sum n_i E_i = 24,0$. Die Verteilung der im Weichgewebe entstehenden Folgeprodukte des Radons (21) (99) ist nicht genau bekannt. Daher ist die obige Abschätzung der Dosisleistung der α -Strahlung des ^{226}Ra und seiner Folgeprodukte sicher mit einem Fehler beaufschlagt. Es ist möglich, daß der Radongehalt des Weichgewebes bei einigen gut durchbluteten Organen sogar höher ist als es dem ^{226}Ra -Gehalt zukommt, da durch den Radongehalt der Atemluft eine starke Radonzufuhr in das Blut stattfindet (21) (99). Von SPIERS wurde berechnet, daß für eine Konzentration des ^{222}Rn in der Atemluft von $5 \cdot 10^{-13}$ c/l der Anteil des Radons im Gleichgewicht mit seinen kurzlebigen Folgeprodukten, der im Blutstrom adsorbiert ist, dort eine Dosisleistung von 0,3 mrad/a ergibt (99) (106).

Von JACOBI wurde die mittlere Strahlenbelastung von menschlichen Geweben bei Dauerinhalation einer spezifischen ^{222}Rn -Aktivität von $1 \cdot 10^{-13}$ c/l bestimmt. Bei dieser Abschätzung sind die kurzlebigen Zerfallsprodukte von RaA bis RaC' berücksichtigt worden,

da diese durch den Zerfall von ^{222}Rn im Gewebe entstehen. Im Sättigungszustand existiert ein radioaktives Gleichgewicht zwischen Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten im Gewebe (58). Für weiches Gewebe erhält man mit einer ^{222}Rn -Löslichkeit von 0,3 eine Jahresdosisleistung von 0,01 mrad/a. Mit einer ^{222}Rn -Löslichkeit von 5 ergibt sich für Fettgewebe eine Strahleneinwirkung von 0,2 mrad/a.

Die Strahlenbelastung der Lunge, die durch Einatmung von Radon, Thoron und deren Folgeprodukten entsteht, ist gesondert zu betrachten. Von JACOBI, SCHRAUB und Mitarbeitern ist eine Strahlenbelastung der Lunge durch die α -Strahlung des Radons und seiner kurzlebigen Folgeprodukte von 5 - 25 mrad im Jahr für eine ^{222}Rn -Konzentration von $1 \cdot 10^{-13} \text{ c/l}$ errechnet worden (58) (107). Nach den Berechnungen von JACOBI beträgt die durch das ^{220}Rn und seine Folgeprodukte entstehende Strahlenbelastung der Lunge etwa 1 mrad pro Jahr (58).

Die in Tabelle 27 errechneten Dosiswerte geben gleichzeitig ein Bild über die Gonadenbelastung für die zugrunde gelegten Aktivitätswerte. Der vorläufige Richtwert für die höchstzulässige Dosis in den Gonaden beträgt $1 \cdot 10^{-4} \text{ rad/d} = 3,65 \cdot 10^{-2} \text{ rad/a}$ (108). Demgegenüber sind die aus der natürlichen Belastung errechneten Dosisleistungswerte für ^{226}Ra und ^{228}Th um etwa den Faktor 1000 kleiner. Die für ^{210}Po erhaltene Dosisleistung ist 100 mal kleiner als der festgesetzte Richtwert.

9. 2 Bestimmung der Dosisleistung der β - und γ -Strahlung natürlich radioaktiver Nuklide im Gewebe des Menschen

Bei den bisher durchgeführten Dosisberechnungen wurde nur die α -Strahlung der Nuklide der ^{226}Ra - und ^{228}Th -Zerfallsreihen berücksichtigt. Bei der folgenden Abschätzung wird die zusätzliche Strahlenbelastung durch die β - und γ -Strahlung dieser Nuklide berechnet. Hierfür sind von KONONENKO, HINDMARSH und SPIERS (105) (109) (110) sowie von JORMACK und CHARLTON (111) analog der Bestimmung der verschiedenen Geometriefaktoren für die im Knochen abgelagerten α -strahlenden Nuklide Berechnungen durchgeführt worden.

Die Dosis D_0 des Gewebes, das von Photonen durchstrahlt wird, ist für den Fall des Elektronengleichgewichtes an einem Punkt P innerhalb einer Kugel, deren Radius mindestens so groß ist wie die maximale Reichweite R_0 der durch Photonen erzeugten Elektronen, gleich :

$$(28) \quad D_0 = N_0 \cdot E_0$$

Hierbei ist N_0 die Anzahl der pro cm^3 im Gewebe erzeugten Elektronen mit einer Energie E_0 und einer Reichweite R_0 . Bei dieser Rechnung wird vorausgesetzt, daß entlang eines bestimmten Weges der Energieverlust der Elektronen kontinuierlich ist. Will man den Dosisbetrag im Weichgewebe ermitteln, das sich innerhalb eines Knochenzylinders mit dem Durchmesser D befindet, so gelten für die Dosis im Punkt P, der sich im Abstand d von der Zylinderwand befindet, die beiden Gleichungen 29 und 30.

$$(29) \quad \begin{matrix} D_{\text{vom Gewebe}} \\ \text{in P} \end{matrix} = N_0 \cdot E_0 \cdot \left[1 - Q(d, D, R_0) \right]$$

Q ist ein von d, D, R_0 abhängiger Geometriefaktor (111). Durch Gleichung 29 wird die Dosis im Punkt P für die Elektronen, welche im Weichgewebe selbst erzeugt werden, berechnet. Der Beitrag zur Dosis im gleichen Punkt P von Elektronen, die im Knochen durch Photonen ausgelöst werden und einen Teil ihrer Energie im Weichgewebe bei P abgeben, ist :

$$(30) \quad \begin{matrix} D_{\text{vom Knochen}} \\ \text{in P} \end{matrix} = \frac{N_0' \cdot E_0}{n} \cdot Q(d, D, R_0)$$

N_0' ist die Anzahl der Elektronen mit der Energie E_0 , die im cm^3 Knochen gebildet werden. n ist das Verhältnis der Elektronenreichweiten im Gewebe zu der im Knochen. Dieses Verhältnis n wurde für alle Elektronenenergien als konstant angenommen.

Die gesamte Dosis in einem Punkt P, der sich innerhalb der mit Weichgewebe ausgefüllten Knochencavität befindet, ist dann :

$$(31) \quad \begin{matrix} D_{\text{ges.}} \\ \text{in P} \end{matrix} = \begin{matrix} D_{\text{vom Gewebe}} \\ \text{in P} \end{matrix} + \begin{matrix} D_{\text{vom Knochen}} \\ \text{in P} \end{matrix}$$

Für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Berechnungen wurde der Geometriefaktor $q = 1$ gesetzt, da die Reichweite R_0 der Elektronen stets groß war gegen den Durchmesser der Knochenhöhlung D . Für die Haversschen Systeme und Osteozyten werden wieder die gleichen Durchmesser verwendet, wie sie bei der Berechnung der Dosisleistung der α -Strahlung benutzt wurden (siehe Kapitel 9.1.1). Aus den Berechnungen der Geometriefaktoren von CORMACK und CHARLTON geht hervor, daß für eine Photonenenergie von 100 KeV der Fehler durch die Annahme $q = 1$ für Durchmesser bis $D = 50 \mu$ kleiner als 10 % ist. Bei einer Photonenenergie von 200 KeV ist der Fehler kleiner als 4 % (111)

Die Gewebedosisleistung von den aus kompakten Knochenbezirken austretenden Elektronen ergibt sich dann aus den Gleichungen 29, 30 und 31 für $q = 1$ zu :

$$(32) \quad D_{\text{ges. in P}} = D_{\text{vom Knochen in P}} = D_{K/W} = \frac{N'_0 \cdot E_0}{n}$$

Setzt man in Gleichung 32 für n das Verhältnis der Massenbremsvermögen der Elektronen von Knochen zu Gewebe ein, so ist N'_0 die Anzahl der Elektronen, die im Gramm Knochen erzeugt werden. Bei den folgenden Berechnungen wird für das Verhältnis der Massenbremsvermögen Knochen zu Gewebe der Wert $n = 0,93$ gewählt und in dem in Frage kommenden Bereich als energieunabhängig angenommen (111) (112). Für die Dosis im weichgewebe der Knochen-cavities, die durch aus dem kompakten Knochen austretende Elektronen erzeugt wird, gilt dann :

$$(33) \quad D_{K/W} = \frac{N'_0 \left[g^{-1} \right] \cdot E \left[\text{MeV} \right]}{0,93}$$

Zur Bestimmung der Dosisleistung der γ -Strahlung der verschiedenen natürlich radioaktiven Nuklide der ^{226}Ra - und ^{228}Th -Zerfallsreihen wird zunächst ein unendlich ausgedehntes Medium angenommen. Es ist :

$$(34) \quad D^* = N^* \cdot \sum E_i \cdot W_i$$

In Gleichung 34 ist E_1 die jeweilige Energie der γ -Linie des Radionuklides, W_1 seine Emissionswahrscheinlichkeit (113) (114) (115) und N^* die Anzahl der β - bzw. α -Zerfallsakte pro Gramm Knochen des Radionuklids, auf dessen β - oder α -Zerfall die Emissionswahrscheinlichkeiten der γ -Linien bezogen werden. Da das Nuklid ^{228}Th über den Einbau des ^{228}Ra in den menschlichen Körper gelangt, wurden die Emissionswahrscheinlichkeiten der γ -Strahlen der einzelnen Radionuklide dieser Zerfallsreihe jeweils auf den β -Zerfall des ^{228}Ra bezogen (113). Es wurde außerdem angenommen, daß zwischen ^{228}Ra und ^{228}Th mit allen folgenden Zerfallsprodukten radioaktives Gleichgewicht besteht (86). Bei der Berechnung der Strahlenbelastung der Knochenhölräume durch die γ -Strahlung des ^{226}Ra und seiner Folgeprodukte wird für das ^{222}Rn eine Retention von 30 % angenommen. Für ^{226}Ra sind die Emissionswahrscheinlichkeiten der γ -Linien der einzelnen Radionuklide der Radiumzerfallsreihe auf den α -Zerfall des ^{226}Ra bezogen (114).

Um den wahren Absorptionsverhältnissen der γ -Strahlung der im Knochen endlicher Dicke vorhandenen Radionuklide besser zu entsprechen, wurde zur Abschätzung der Dosisleistung im Knochen ein Parallelepipet von 1 cm Dicke und unendlicher Flächenausdehnung angenommen. Hierfür gilt die folgende Gleichung :

$$(35) \quad D_{P.E.} = D^* \cdot (\mu \cdot \epsilon_s) \cdot G_{P.E.}$$

$$(36) \quad G_{P.E.} = \frac{1}{2\mu_i \cdot s} \left\{ 2 - E_{2i}(s \cdot \mu_i \cdot d) - E_{2i} \left[s \cdot \mu_i \cdot (h-d) \right] \right\}$$

$$\text{In Gleichung 36 ist : } E_{2i}(s \cdot \mu_i \cdot d) = s \cdot \mu_i \cdot d \int_{s \cdot \mu_i \cdot d}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t^2} \cdot dt.$$

Dieses Integral ist im "Reactor Shielding Design Manual" tabelliert (116). wie man aus Gleichung 36 ersieht, hängt die Dosisleistung außer von $(\mu \cdot \epsilon_s)_i$ und $\mu_i s$, wie nicht anders zu erwarten, auch noch von der Dicke h und dem Abstand d von der Oberfläche des Parallelepipeds ab. $(\mu \cdot \epsilon_s)$ ist der lineare wahre Energieübertragungskoeffizient des kompakten Knochens und μ der

gesamte lineare Schwächungskoeffizient des kompakten Knochens.

ϵ_s ist der Streuanteil des Comptonwirkungsquerschnittes.

Der Faktor s ist ein Maß für die Streuung. Da s nicht bekannt ist, wurde in Gleichung 36 für $\mu_i \cdot s$ der Wert $(\mu - \epsilon_s)_i$ verwendet, wodurch eine Überbewertung des Streuanteils auftritt. Dadurch wird bei größeren Schichtdicken die Dosisleistung etwas zu hoch abgeschätzt. Setzt man für $\mu_i \cdot s$ den Wert $(\mu - \epsilon_s)_i$ in die Gleichungen 35 und 36 ein, so erhält man Gleichung 37 in der Form :

(37)

$$D_{P.E.} = \frac{N^*}{2(\mu - \epsilon_s)_i} \sum E_i \cdot W_i (\mu - \epsilon_s)_i \left\{ 2 - E_{2i} [(\mu - \epsilon_s)_i d] - E_{2i} [(\mu - \epsilon_s)_i (h-d)] \right\}$$

$$= \frac{N^*}{2} \sum E_i \cdot W_i \left\{ 2 - E_{2i} [(\mu - \epsilon_s)_i d] - E_{2i} [(\mu - \epsilon_s)_i (h-d)] \right\}$$

Für die Dosisleistung in der Mitte des Parallelepipeds $d = \frac{h}{2}$ ergibt sich aus Gleichung 37 :

$$(38) \quad D_{P.E.} = N^* \sum E_i \cdot W_i \left\{ 1 - E_{2i} \left[(\mu - \epsilon_s)_i \cdot \frac{h}{2} \right] \right\} = N^* \sum E_i \cdot W_i \cdot G_i'$$

mit $E_{2i} \left[(\mu - \epsilon_s)_i \cdot \frac{h}{2} \right] = (\mu - \epsilon_s)_i \cdot \frac{h}{2} \int_{(\mu - \epsilon_s)_i \frac{h}{2}}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t^2} \cdot dt$

Die Dosisleistung im Weichgewebe der Knochencavities beträgt dann nach Gleichung 33 :

$$(39) \quad D_{K/W} = \frac{N^* \cdot \sum E_i \cdot W_i \cdot G_i'}{0,93}$$

Die Werte für $(\mu - \epsilon_s)_i$ wurden dem "Report of the International Commission on Radiological Units and Measurements 1959" entnommen (112). Für eine Dicke des Parallelepipeds von $h = 1$ cm wurde sodann die Dosisleistung der γ -Strahlung für die einzelnen spezifischen Aktivitätswerte der natürlich radioaktiven Nuklide der ^{226}Ra -, ^{228}Ra - und ^{228}Th -Zerfallsreihen abgeschätzt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 28 zusammengestellt.

Zur Berechnung des Dosisleistungsanteils der β -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide des Knochens wird Gleichung 33 verwendet. In diesem Falle wird für E die mittlere Energie des β -Spektrums $\bar{E}_\beta$ in Gleichung 33 eingesetzt (100). Es ist $\bar{E}_\beta$:

$$(40) \quad \bar{E}_\beta = \frac{\int_0^{E_0} E \cdot N(E) \cdot dE}{\int_0^{E_0} N(E) \cdot dE}$$

$N(E)$ ist hierbei die Anzahl der β -Teilchen mit Energien zwischen E und $E + dE$, E_0 ist die maximale β -Energie. Als gute Annäherung hat sich für viele β -Strahler die Regel

$$(41) \quad \bar{E}_\beta \sim \frac{1}{2} E_{\max}$$

bewährt, obwohl hierbei die Abhängigkeit von der Ordnungszahl der β -strahlenden Nuklide nicht berücksichtigt wurde (100). Die in der vorliegenden Berechnung benutzten Werte für $\bar{E}_\beta$ wurden aus der Literatur entnommen (100) (115). Es ist dann :

$$(42) \quad D_{K/W} = \frac{N'_0 \sum \bar{E}_{\beta,i} \cdot W_i}{0,93}$$

N'_0 ist die α - oder β -Aktivität pro Gramm Knochensubstanz der entsprechenden Ausgangsglieder der betrachteten Zerfallsreihen in $\mu\text{C/g}$. W_i ist jeweils die Anzahl der β -Zerfälle der entsprechenden Radionuklide bezogen auf einen α -Zerfall des ^{226}Ra für die Radiumzerfallsreihe und bezogen auf einen β -Zerfall des ^{228}Ra für alle Zerfallsprodukte der Thoriumzerfallsreihe (113) (115).

Die ermittelte zusätzliche Strahlenbelastung, die von der β -Strahlung der natürlich radioaktiven Nuklide ^{228}Ra bzw. ^{228}Th im Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten, ^{226}Ra im Gleichgewicht mit 30 % seiner kurzlebigen Folgeprodukte, sowie von ^{210}Pb und ^{210}Bi erzeugt wird, ist ebenfalls in Tabelle 28 zusammengefaßt.

Die Berechnung der Strahlenbelastung des Weichgewebes durch die β - und γ -Strahlung des ^{210}Pb und ^{210}Bi ergab für eine spezifische

Aktivität des ^{210}Pb bzw. ^{210}Bi von $3 \cdot 10^{-15} \text{ c/g}$ Frischgewicht eine Dosisleistung von 0,02 mrad/a. Demgegenüber ist die Dosisleistung der β - und γ -Strahlung des ^{226}Ra , ^{228}Th sowie deren Folgeprodukte im Weichgewebe noch wesentlich kleiner.

Strahlenart	Aktivität/g Frischgewicht (10^{-15} c/g)	Dosisleistung (10^{-3} mrad/a)
$D_{K/\gamma}$ für die γ -Strahlung des ^{228}Th + Folgeprodukte	1,2	4
$D_{K/\gamma}$ für die γ -Strahlung des ^{228}Ra + Folgeprodukte	1,2	5
$D_{K/\gamma}$ für die γ -Strahlung des ^{226}Ra + 30 % der kurz- lebigen Folgeprodukte	4	5
$D_{K/\gamma}$ für die γ -Strahlung des ^{210}Pb im radioaktiven Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten ^{210}Bi und ^{210}Po	37	0,5
$D_{K/\beta}$ für die β -Strahlung des ^{228}Th + Folgeprodukte	1,2	20
$D_{K/\beta}$ für die β -Strahlung des ^{228}Ra + Folgeprodukte	1,2	30
$D_{K/\beta}$ für die β -Strahlung des ^{226}Ra + 30 % der kurz- lebigen Folgeprodukte	4	20
$D_{K/\beta}$ für die β -Strahlung des ^{210}Pb im radioaktiven Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten ^{210}Bi und ^{210}Po	37	300

Tabelle 28 Mittlere Strahlenbelastung der Knochencavities eines Haversschen Systems von 0 - 50 μ Durchmesser durch die β - bzw. γ -Strahlung der natürlichen radioaktiven Nuklide ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th und ^{210}Pb mit ihren Folgeprodukten

wie man aus einem Vergleich der Tabellen 26 und 28 ersieht, ist der Anteil der Dosis der β - und γ -strahlenden Komponente der natürlich radioaktiven Nuklide ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Pb sowie deren Folgeprodukte gegenüber der Strahlenbelastung, die durch die α -Strahlung dieser Nuklide entsteht, vernachlässigbar.

9. 3 Die gesamte natürliche Dosisbelastung des Menschen im Vergleich zur Belastung durch ^{90}Sr und ^{137}Cs

Berechnet man die Dosisleistung in mrad/a von anderen β - bzw. γ -strahlenden Nukliden wie ^{90}Sr + ^{90}Y , ^{137}Cs , ^{40}K und ^{14}C , die sich ebenfalls im menschlichen Knochen ablagern, so erhält man jedoch mit den in Tabelle 26 zusammengestellten Dosisleistungen vergleichbare Werte.

In den vorhergehenden Kapiteln wurde die Strahlenbelastung des Menschen durch ^{226}Ra und ^{228}Th sowie deren Folgeprodukte ermittelt. Im folgenden Abschnitt soll die natürliche Strahleneinwirkung mit der Strahlenbelastung, die durch inkorporierte, langlebige Spaltprodukte von Kernexplosionen gegeben ist, verglichen werden.

Die spezifische Radioaktivität des ^{137}Cs pro Gramm Gewebe wurde ausgehend von einer Aktivität von 60 $\mu\text{pc/g}$ Kalium berechnet (99). Wenn man annimmt, daß die spezifischen Radioaktivitäten von Knochen und Gewebe gleich sind, ergibt sich eine spezifische ^{137}Cs -Aktivität pro Gramm Knochensubstanz einschließlich Knochenmark von $1,2 \cdot 10^{-13}\text{c}$ (99).

Die Dosisleistung, die durch die γ -Strahlung des ^{137}Cs im menschlichen Weichgewebe erzeugt wird, wurde zunächst für den Mittelpunkt eines Zylinders von 60 cm Höhe und 20 cm Radius berechnet. Hierfür gilt die Gleichung :

$$(43) \quad D_{\text{Zylinder M.P.}} = \frac{N \cdot w \cdot E(\mu - \epsilon_s)}{2 \mu \cdot s} \cdot \left[G(\mu \cdot s \cdot h_1, b) + G(\mu \cdot s \cdot h_2, b) \right]$$

In Gleichung 43 wird für $\mu \cdot s$ wieder die Größe $(\mu - \epsilon_s)$, der wahre lineare Energieübertragungskoeffizient, verwendet (siehe Kapitel 9. 2). Da die Dosis im Mittelpunkt des Zylinders berechnet werden

soll, gilt $h_1 = h_2 = \frac{h}{2}$. Die Größe b ist : $b = (\mu - \epsilon_s) \cdot R$, wobei R der Radius des Zylinders ist.

Die Funktion vom Typ $G(a,b)$ in Gleichung 43 hat die folgende Form (116) :

$$(44) \quad G(a,b) = \int_0^b F(\arctan \frac{a}{b'}, b') db'$$

wobei

$$(45) \quad F(\theta, b) = \int_0^\theta e^{-b \sec \theta'} d\theta'$$

Die Funktion $G(a,b)$ ist im "Reactor Shielding Design Manual" tabelliert (116). Für die Dosis im Mittelpunkt des Zylinders gilt :

$$(46) \quad D = \frac{N^* \cdot E \cdot w \cdot (\mu - \epsilon_s)}{2(\mu - \epsilon_s)} \cdot 2 \cdot \left\{ G \left[(\mu - \epsilon_s) \cdot \frac{h}{2}, (\mu - \epsilon_s) \cdot R \right] \right\}$$

$$(47) \quad D = N^* \cdot E \cdot w \cdot \left\{ G \left[(\mu - \epsilon_s) \cdot \frac{h}{2}, (\mu - \epsilon_s) \cdot R \right] \right\}$$

Mit $h = 60$ cm und $R = 20$ cm erhält man dann im Mittelpunkt des Zylinders für eine spezifische Weichgewebeaktivität von $1,2 \cdot 10^{-13}$ c/g eine Dosis von 0,8 mrad/a. Der zur Berechnung verwendete lineare Energieübertragungskoeffizient $(\mu - \epsilon_s) = 0,032$ cm⁻¹ (112). Die Energie E der γ -Strahlung beträgt 0,662 MeV. Die Emissionswahrscheinlichkeit w der γ -Strahlung bezogen auf den β -Zerfall ist gleich 0,92. N^* ist die Anzahl der β -Zerfallsakte des ¹³⁷Cs pro Gramm Weichgewebe.

Da man für h gleich unendlich etwa den gleichen $G[(\mu - \epsilon_s) \cdot h, (\mu - \epsilon_s) \cdot R]$ Wert erhält wie für $\frac{h}{2} = 30$ cm, ist die für den Mittelpunkt des Zylinders errechnete Dosis gleich der Dosis auf der Achse eines unendlich ausgedehnten Zylinders von 20 cm Radius.

Die Dosis, die durch die β -Strahlung des ¹³⁷Cs entsteht, ergibt sich nach Gleichung 34 zu 0,5 mrad/a. Die zur Berechnung verwendete mittlere β -Energie beträgt 0,23 MeV (100). Daraus folgt, daß die gesamte Strahlenbelastung des Weichgewebes für eine spezifische ¹³⁷Cs-Aktivität von $1,2 \cdot 10^{-13}$ c/g 1,3 mrad beträgt.

Für das Knochenmark kann unter der Voraussetzung, daß der absorbierende Einfluß der Knochenwand vernachlässigbar ist, die gleiche Strahlenbelastung angenommen werden.

Die Dosis in den Cavities des Knochens selbst wurde zunächst für die β -Strahlung des ^{137}Cs nach Gleichung 42 berechnet. Sie beträgt 0,56 mrad/a. Der Anteil der Strahlenbelastung dieser mit Weichgewebe ausgefüllten kleinen Knochenhohlräume durch die γ -Strahlung wurde gleich dem Betrag von 0,8 mrad/a, der für das Weichgewebe ermittelt wurde, gesetzt. Damit ergibt sich für die Knochen Cavities eine Strahlenbelastung von etwa 1,4 mrad/a.

Die Strahlenbelastung durch $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, mit einer mittleren β -Energie von 1,13 MeV (100), wurde für eine spezifische Aktivität von $1 \cdot 10^{-12} \text{c/g Ca} = 1,3 \cdot 10^{-13} \text{c/g Knochen}$ berechnet. Die Dosis im kompakten Knochen ergibt sich zu 2,7 mrad/a. Für die Dosis innerhalb eines Haversschen Kanals erhält man nach Gleichung 42 einen Wert von 2,9 mrad/a. Um die Dosisleistung der β -Strahlung des $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ in einer Markhöhle von 500 μ Durchmesser zu erhalten, wurden die Meßergebnisse von SPIERS verwendet (99). Er stellte fest, daß für eine Markhöhle von 500 μ Durchmesser und einer Dicke der Trabeculären Knochenbälkchen von 125 μ , die $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ enthalten, ein Verhältnis der Dosis im kompakten Knochen zur Dosis im Knochenmark von 4 besteht. Daher wurde zur Ermittlung der Dosis innerhalb einer Markhöhle von 500 μ Durchmesser die $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ Dosisleistung vom kompakten Knochen von 2,7 mrad/a durch 4 dividiert. Die ermittelte Dosisleistung innerhalb der Markhöhle beträgt dann 0,7 mrad/a.

Die Dosis, die durch die β -Strahlung des ^{90}Sr im Weichgewebe erzeugt wird, ist vernachlässigbar, da nach eigenen Untersuchungen der ^{90}Sr -Gehalt des Weichgewebes um den Faktor 400 kleiner ist als im Knochen (46).

Die Dosisleistung, die demgegenüber durch die β -Strahlung des natürlich radioaktiven Nuklids ^{14}C im Knochen erzeugt wird, beträgt nach den neusten Messungen 1,64 mrad/a (99). Für das Weichgewebe wurde eine Belastung von 0,7 mrad/a ermittelt (99). Die durch die β - und γ -Strahlung des natürlichen Radionuklids ^{40}K

erzeugte durchschnittliche Dosisleistung im Knochen und Knochenmark des Menschen wurde von SPIERS mit 15 mrad/a angegeben, die für Gonaden betrug 20 mrad/a (99).

Sämtliche bisher benutzten Dosiswerte sind in rad angegeben worden. Das rad ist eine Einheit für die absorbierte Energie, 1 rad ist gleich 100 erg absorbiierter Energie in einem Gramm Gewebe. Zur Berechnung der Äquivalenzdosis in rem wurde für α -Strahlung für die folgenden Berechnungen ein Qualitätsfaktor von 10 zugrunde gelegt. Dieser Wert basiert auf den neusten Empfehlungen der ICRP (117) (118).

In der Tabelle 29 sind die Dosiswerte der verschiedenen Beiträge zur gesamten Strahlenbelastung des Menschen zusammengestellt (siehe hierzu auch Kapitel 9. 1 und 9. 2). Alle Dosisleistungen sind in mrem pro Jahr angegeben. Die Tabelle zeigt, daß die Strahlenbelastung der Knochencavities durch den natürlichen ^{226}Ra -, ^{228}Th - und ^{210}Po -Gehalt wesentlich höher ist als durch den ^{137}Cs - und $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ -Gehalt. In Bezug auf das ^{137}Cs ergibt sich eine 45 mal höhere und in Bezug auf das $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ eine 20 mal höhere Dosisleistung.

Der Beitrag zur Dosisbelastung von den in der Tabelle 29 nicht aufgeführten radioaktiven Nukliden wird im folgenden diskutiert. Die Strahlenbelastung des menschlichen Körpers durch die α -Strahlung des ^{239}Pu , die α -strahlenden Uran-Isotope sowie alle α -strahlenden Nuklide der Aktiniumreihe ist gegenüber der Belastung, die durch die α -strahlenden Nuklide der Radium- und Thoriumreihe erzeugt wird, vernachlässigbar (35) (86) (119). Für das ^{239}Pu wurde von FRANKE (120) unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Aufnahme des Nuklids aus Luft und Nahrung durch einen Vergleich mit ^{90}Sr eine ^{239}Pu -Aktivität im Knochen des Menschen von etwa $1 \cdot 10^{-15} \text{ c/g Ca}$ abgeschätzt. Dies entspricht einer spezifischen ^{239}Pu -Aktivität pro Gramm Knochengewebe von etwa $3 \cdot 10^{-16} \text{ c}$. Es ergibt sich dadurch eine zusätzliche Dosisbelastung des kompakten Knochens von 0,3 mrem/a. OSBORN berechnete aus seinen Messungen der ^{239}Pu -Aktivität der menschlichen Lunge von $1,4 \cdot 10^{-16} \text{ c/g Frischgewicht}$ eine ^{239}Pu -Aktivität für den Knochen von etwa $1 \cdot 10^{-16} \text{ c/g Frischgewicht}$. Die hierfür gültige Dosisbelastung des Knochens würde dann 0,1 mrem/a betragen (121).

Strahlenquellen	Gonaden	Haversches System Knochen	Knochenmark	Lunge
<u>von außen :</u>				
Kosmische Strahlung (einschließlich Neutronen)	50	50	50	50
Umgebungsstrahlung (einschließlich der strahlenden radioaktiven Nuklide, die sich in der Luft befinden)	50	50	50	50
<u>von innen :</u>				
^{40}K	20	15	15	20
^{14}C	0,7	1,6	1,6	0,7
^{226}Ra (+ 30% kurzlebige Folgeprodukte)	0,2	10,7 Canaliculi 0 $\mu\emptyset$ 10,3 Osteoz. 5 $\mu\emptyset$ 5,3 Havers.kan. 50 $\mu\emptyset$	1,8 +	0,2
^{228}Th (+ 100% Folgeprodukte)	0,3	9,8 Canaliculi 0 $\mu\emptyset$ 9,4 Osteoz. 5 $\mu\emptyset$ 5,8 Havers.kan. 50 $\mu\emptyset$	2,0 +	0,3
^{210}Po	3,0	42,0 Canaliculi 0 $\mu\emptyset$ 39,5 Osteoz. 5 $\mu\emptyset$ 20,0 Havers.kan. 50 $\mu\emptyset$	6,7 + 31,0 +	3,0
^{222}Rn + Zerfallsprodukte	0,1	0,1	0,1	50 - 250
^{220}Rn (Tn) + Zerfallsprodukte	---	---	---	10
^{137}Cs	1,3	1,4 Canaliculi 0 $\mu\emptyset$	1,3	1,3
^{90}Sr + ^{90}Y	---	2,9 Canaliculi 0 $\mu\emptyset$	0,7	---
+) für eine an den Knochen angrenzende Markscheit von 0 - 40 μ Dicke *) für im Knochenmark gleichmäßig verteiltes ^{210}Po				

Tabelle 29 Die verschiedenen Komponenten der natürlichen Strahleneinwirkung auf den Menschen im Vergleich zur Strahlenbelastung durch ^{90}Sr und ^{137}Cs in mrem/a (Strahlenbelastung von außen (99))

Eine Strahlenbelastung des menschlichen Körpers durch die Radionuklide der Aktinium-Reihe ist ebenfalls vernachlässigbar, da die Halbwertszeit des einzigen Radium-Isotops in der Aktinium-Reihe (AcX), über das ein bevorzugter Einbau von Nukliden dieser Reihe in den Knochen möglich wäre, nur 1,4 Tage beträgt. Sämtliche Folgeprodukte dieses Radium-Isotops haben nur Halbwertszeiten in der Größenordnung von Minuten bzw. Sekunden. Außerdem zeigen Messungen in Boden- und Seewasserproben, daß der Protactiniumgehalt etwa um den Faktor 10 kleiner ist als der Gehalt an ^{230}Th (63) (122).

Ein Nachweis für das Vorhandensein von ^{232}Th im menschlichen Körper konnte bis jetzt noch nicht erbracht werden (86).

Die Übereinstimmung der ^{226}Ra -Werte aus den Mischmethodenmessungen mit den Emanationsmessungen (vergleiche Kapitel 6) läßt sich als Hinweis dafür deuten, daß dem im menschlichen Knochen enthaltenen ^{235}U - ^{238}U , ^{230}Th , ^{232}Th , ^{239}Pu sowie dem Aktinium mit seinen Folgeprodukten in Bezug auf die α -Strahlenbelastung keine Bedeutung zukommt und bei der Dosisabschätzung vernachlässigt werden kann.

Während diese Nuklide bei den Radiumemanationsmessungen naturgemäß nicht erfaßt werden, wurden sie bei den Mischmethodenmessungen in das Ergebnis eingehen und zu einem scheinbar höheren, von der Emanationsmethode abweichenden ^{226}Ra -Gehalt führen.

10 Zusammenfassung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war, den Gehalt des menschlichen Körpers an den natürlich alphastrahlenden Nukliden ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po zu bestimmen sowie deren Verteilung zu studieren.

Dazu wurde an menschlichen Knochen- und Weichgewebeprobe(n) der ^{226}Ra -Gehalt nach der Emanationsmethode, der ^{210}Po -Gehalt nach chemischer Anreicherung mittels eines Methandurchflußzählers und der ^{228}Th -Gehalt mit Hilfe einer speziellen Szintillationsmethode, der sogenannten "Mischmethode", gemessen. Eine gleichzeitig mit der Mischmethode durchgeführte Bestimmung der gesamten α -Aktivität (^{226}Ra , ^{228}Th sowie deren Folgeprodukte und ^{210}Po) gab die Möglichkeit zur Kontrolle der gefundenen Einzelwerte.

Messungen des ^{226}Ra -Gehaltes von Knochen und Organen in Abhängigkeit vom Alter sollten Aufschluß geben über den Einbau von ^{226}Ra in den menschlichen Organismus bei Dauerzufuhr kleinster Mengen. Bei menschlichen Knochen verschiedenen Alters (Knochen von Totgeburten bis zu Knochen von 80 Jahre alten Menschen) sowie bei Fötenknochen zwischen Mens IV und Mens X wurde keine Korrelation zwischen ^{226}Ra -Gehalt und Alter gefunden. Sowohl für Knochen von erwachsenen Menschen als auch für Fötenknochen ergab sich der gleiche spezifische ^{226}Ra -Gehalt pro Gramm Knochenasche von im Mittel $1,3 \cdot 10^{-14} \text{ c}$. Der spezifische ^{226}Ra -Gehalt des Weichgewebes zeigt sich ebenfalls als unabhängig vom Alter und betrug im Mittel $1 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Frischgewicht bzw. $7 \cdot 10^{-13} \text{ c/g}$ Calcium. Für den "Standardmensch" errechnet sich daraus ein ^{226}Ra -Gehalt pro Gesamtkörper von $0,4 \cdot 10^{-10} \text{ c}$, von dem sich 85 % im Skelett und 15 % im Weichgewebe befinden. Dieser Wert stimmt überein mit Messungen an Krematoriumsaschen, nach denen der ^{226}Ra -Gehalt pro Gesamtkörper im Mittel bei $0,47 \cdot 10^{-10} \text{ c}$ liegt.

Messungen von plazentarem Gewebe ergaben einen spezifischen ^{226}Ra -Gehalt von $1,6 \cdot 10^{-16} \text{ c/g}$ Frischgewicht bzw. $3,5 \cdot 10^{-13} \text{ c/g}$ Calcium. hieraus wird gefolgert, daß die Plazenta für ^{226}Ra keine Schranke darstellt.

In weiteren Messungen wurde der ^{210}Po - und ^{210}Pb -Gehalt von Femur- und Tibiaproben bestimmt und das Aktivitätsverhältnis von ^{210}Po zu ^{210}Pb im Skelett des lebenden menschlichen Organismus ermittelt. Im Mittel beträgt danach die ^{210}Pb -Aktivität des menschlichen Knochens $3,7 \cdot 10^{-14}$ c/g Frischgewicht und die ^{210}Po -Aktivität $3,1 \cdot 10^{-14}$ c/g Frischgewicht. Daraus ergibt sich ein Aktivitätsverhältnis von ^{210}Po zu ^{210}Pb im menschlichen Skelett von 0,8. Die Bestimmung des ^{210}Po -Gehaltes von menschlichen Organen zeigte, daß 60 % des insgesamt im Körper vorhandenen ^{210}Po im Skelettsystem abgelagert wird.

Zur Messung des ^{228}Th -Gehaltes bzw. der gesamten α -Aktivität in menschlichen Knochenaschen fand eine Szintillationsmethode Verwendung, bei der die Asche mit der Szintillatorsubstanz vermischt wurde ("Mischmethode"). Mit der Mischung der beiden Komponenten war eine erhebliche Vergrößerung der Nachweisempfindlichkeit zu erreichen. Zur Bestimmung der ^{228}Th -Aktivität diente eine Koinzidenzmessung, die über den Doppelzerfall $\text{Tn} \rightarrow \text{ThA} \rightarrow \text{ThB}$ ein direktes Maß für den ^{228}Th -Gehalt lieferte.

Die Zählausbeute bei dieser Methode zeigt sich als von den folgenden Parametern abhängig :

1. dem Mischungsverhältnis von ZnS(Ag) und Asche
2. der Dicke der Probenschicht
3. der Korngröße von ZnS(Ag) und Asche
4. dem Absorptionskoeffizienten der Mischung für das Lumineszenzlicht des ZnS(Ag)
5. der chemischen Konsistenz der Probe.

Die Überprüfung des Einflusses dieser verschiedenen Parameter auf die Zählausbeute führte zu folgenden Resultaten :

1. Das günstigste Mischungsverhältnis von Knochenasche zu ZnS(Ag) lag bei 1 : 2.
2. Für eine mit Knochenasche und ZnS(Ag) bedeckte Fläche mit dem Durchmesser von 4,5 cm war die Sättigungsdicke der Mischung 5,4 g.
3. Bei Durchmessern der Knochenpartikel in einem Bereich von kleiner als 1μ bis zu 3μ ergab sich die Zählrate als unabhängig von der Korngröße.

4. Die optische Remission kann als Maß für die Absorption des Lumineszenzlichtes in der Probenmischung (Knochenasche und ZnS(As)) angesehen werden. Es wurde ein empirisch gefundener Zusammenhang zwischen dem Remissionsgrad der Probe und der Zählausbeute für die gesamte α -Strahlung von ^{226}Ra mit Folgeprodukten, ^{228}Th mit Folgeprodukten sowie ^{210}Po angegeben. Außerdem wurde auch für die Koinzidenzmessung des Doppelzerfalls Thoron $\rightarrow$ Thorium A (die Halbwertszeit von $\text{ThA} = 0,16 \text{ sec}$) $\rightarrow$ Thorium B die Zählausbeute als Funktion des Remissionsgrades der Probe ermittelt.

Im einzelnen erfolgten mit der Mischmethode die folgenden Messungen, deren Ergebnisse mitgeteilt werden :

1. Bestimmung des ^{228}Th -Gehaltes von menschlichen Knochenaschen. Der ^{228}Th -Gehalt ergab sich im Mittel zu $4 \cdot 10^{-15} \text{ c}$ pro Gramm Knochenasche.
2. Bestimmung der ^{226}Ra -Aktivität der Knochenproben aus der gesamten α -Impulsrate und den vorausgegangenen Messungen des ^{210}Po - sowie des ^{228}Th -Gehaltes. Der erhaltene Wert stimmt mit dem nach der Emanationsmethode gewonnenen ^{226}Ra -Gehalt überein.
3. Bestimmung des Verhältnisses von ^{228}Th zu ^{226}Ra im menschlichen Knochen, für das sich im Mittel ein Wert von 0,4 ergab.
4. Bestimmung des ^{228}Th -Gehaltes in Gewebeproben von Thorotrastpatienten. Der Vergleich der Resultate mit γ -spektrometrischen Messungen zeigte eine Übereinstimmung innerhalb von $\pm 10 \%$.
5. Abschätzung des Verhältnisses von ^{232}Th zu ^{228}Th für Knochen und Weichgewebe von Thorotrastpatienten. Dieser Quotient nimmt die folgenden Werte an :

für Knochen	$^{232}\text{Th} : ^{228}\text{Th} \sim 0,6$
für Weichgewebe	$^{232}\text{Th} : ^{228}\text{Th} \sim 2,5$

Aufgrund autoradiographischer Untersuchungen an Rentierknochen konnte die Annahme bestätigt werden, daß sich bei Dauerzufuhr kleinster Mengen von ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po in den Knochen eine gleichmäßige Verteilung dieser natürlich radioaktiven Nuklide einstellt.

Als Ergebnis der Untersuchungen kann mit den gemessenen Aktivitätswerten von ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po eine neue Abschätzung der natürlichen Strahleneinwirkung auf den Menschen durchgeführt werden.

Die Belastung durch das ^{226}Ra und die im Skelett verbleibenden 30 % seiner kurzlebigen Folgeprodukte ist etwa gleich groß der durch ^{228}Th und seine Folgeprodukte verursachten Strahlenbelastung. Der ^{210}Po -Gehalt des Knochens führt dagegen zu einer Belastung, die etwa 4 mal höher ist als die, welche durch ^{226}Ra und 30 % seiner kurzlebigen Folgeprodukte erzeugt wird.

Tabellen - Anhang

Tabellen I - VIII

Tabelle I

Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Knochen aus
dem Gebiet Frankfurt am Main (Tibia und Femur).

Alter (a)	$^{226}\text{Ra/g}$ Asche (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Frischgew. (10^{-15}c/g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Calcium (10^{-14}c/g)
3	1,3	3,0	3,4
8	1,1	4,0	3,0
19	0,8	4,2	2,0
21	1,6	8,2	4,3
22	0,8	4,7	2,2
22	0,9	4,9	2,3
25	1,5	4,6	4,0
27	0,6	3,4	1,7
35	2,2	6,1	6,0
35	3,0	15,9	8,2
45	1,4	7,1	3,7
50	1,5	4,6	4,0
53	0,7	2,3	1,9
53	0,7	1,8	1,9
55	0,6	3,6	1,7
55	1,2	6,0	3,1
56	2,6	6,7	6,9
57	1,2	3,0	3,2
58	0,9	2,7	2,4
60	1,2	4,0	3,2
60	2,8	7,6	7,7
62	3,0	7,5	7,9
62	0,8	2,1	2,1
63	1,0	2,7	2,7
63	0,4	1,2	1,1
64	2,5	6,1	6,8
64	1,3	3,3	3,5
65	1,3	3,9	3,5
68	0,9	2,3	2,4
71	0,8	1,6	2,2
71	1,0	2,0	2,7
82	1,0	2,4	2,7
83	1,2	3,4	3,3
Gesamtmittelwerte:			
	<u>1,3</u>	<u>4,5</u>	<u>3,6</u>

Tabelle II

Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Knochen aus
dem Gebiet Kiel (Tibia und Femur).

Alter (a)	$^{226}\text{Ra/g}$ Asche (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Frischgew. (10^{-15}c/g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Calcium (10^{-14}c/g)
3	0,8	1,6	2,1
6	1,0	2,9	2,8
9	1,6	3,7	4,2
18	1,5	4,0	4,5
20	0,7	1,5	1,9
21	0,3	0,7	0,9
23	1,1	2,4	3,1
24	1,1	2,5	3,1
24	1,4	3,3	3,7
29	0,8	1,9	2,2
34	1,1	2,3	3,8
36	1,1	2,4	2,8
36	1,4	3,6	3,8
38	1,7	3,7	4,5
44	0,7	1,4	1,9
46	0,9	1,9	2,3
47	0,6	1,2	1,5
49	0,3	0,8	1,9
50	0,3	0,5	0,7
50	1,1	2,4	2,9
50	0,5	1,2	2,0
52	1,1	2,3	2,9
53	1,2	2,9	3,2
55	1,1	1,8	3,1
56	1,0	1,9	2,7
58	1,0	2,4	2,7
58	1,0	1,7	2,6
61	1,4	2,9	3,7
62	1,1	2,0	2,9
63	0,8	1,5	2,1
65	1,9	3,9	5,2
66	1,0	1,9	2,8
68	0,9	1,7	2,4
79	0,6	0,9	1,7
80	0,5	1,3	1,8
83	1,2	2,4	3,2

Gesamtmittelwerte:

1,0

2,1

2,8

Die gesamten Mittelwerte aus den Tabellen I und II sind:

$1,2 \cdot 10^{-14}$ c/g Asche

$3,3 \cdot 10^{-15}$ c/g Frischgewicht

$3,2 \cdot 10^{-14}$ c/g Calcium

Tabelle III

Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Fötusknochen.

Alter der Föten (Wens)	Anzahl der Föten	Ca/g Asche (g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Asche (10^{-15}c/g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Frischgew. (10^{-16}c/g)	$^{226}\text{Ra/g}$ Calcium (10^{-13}c/g)
IV	20	0,328	17,0	12,0	0,52
V	12	0,353	13,3	12,8	0,38
	14	0,353	12,0	9,7	0,34
VI	3	0,235	17,9	17,5	0,76
	3	0,312	5,9	5,7	0,19
	5	0,229	14,0	15,4	0,61
	2	0,250	15,0	14,1	0,60
	4	0,374	15,0	15,2	0,40
	23	0,325	5,1	1,0	0,16
	13	0,325	17,5	17,6	0,54
	10	0,325	16,0	13,9	0,49
VII	1	0,382	11,0	10,0	0,29
	2	0,321	16,0	16,2	0,50
	2	0,321	12,0	12,1	0,37
	2	0,360	3,9	2,3	0,11
	2	0,321	5,9	5,9	0,18
	1	0,321	13,2	13,3	0,41
	5	0,321	25,1	25,2	0,79
	7	0,321	9,6	14,1	0,30

Alter der Föten (Mens)	Anzahl der Föten	Ca/g Asche (g)	$^{226}\text{Ra/g Asche}$ (10^{-15}c/g)	$^{226}\text{Ra/g Frischgew.}$ (10^{-16}c/g)	$^{226}\text{Ra/g Calcium}$ (10^{-13}c/g)
VIII	1	0,381	22,1	22,3	0,58
	1	0,369	6,3	4,6	0,17
	1	0,368	8,5	7,1	0,23
	1	0,381	17,2	20,3	0,45
	1	0,381	7,6	6,3	0,20
	1	0,381	4,0	4,1	0,12
	1	0,381	8,8	9,1	0,23
	5	0,381	13,5	13,3	0,35
	6	0,381	23,5	24,8	0,62
IX	1	0,300	13,2	10,3	0,44
	1	0,300	7,6	7,0	0,25
	1	0,300	7,0	5,5	0,23
	3	0,300	17,5	22,4	0,58
X					
	1	0,360	15,4	16,0	0,43
	1	0,356	5,6	8,9	0,18
	1	0,360	7,0	10,3	0,19
	1	0,360	7,9	7,9	0,22
	1	0,376	6,8	10,2	0,23
	1	0,356	14,2	16,9	0,40
	1	0,388	11,8	14,1	0,31
	1	0,366	10,3	12,2	0,28
	1	0,384	9,8	11,6	0,25
	1	0,360	14,7	47,7	0,41
	1	0,360	6,1	7,6	0,17
	1	0,360	25,0	31,8	0,70
	1	0,360	10,2	11,4	0,28
	1	0,360	10,8	11,1	0,30
	1	0,337	31,6	45,6	0,95

Tabelle IV

Der natürliche ^{226}Ra -Gehalt menschlicher Fötenweichteile.

Alter der Föten (Mens)	Anzahl der Föten	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Asche (10^{-14}c/g)	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Frischgew. (10^{-16}c/g)	$^{226}\text{Ra}/\text{g}$ Calcium (10^{-13}c/g)
IV	6	1,1	1,0	4,5
V	14	1,1	1,0	3,1
VI	10 13 10	1,4 0,9 1,2	1,5 1,0 1,3	8,7 5,9 6,9
VII	6 15	0,9 1,2	0,8 1,2	7,4 8,3
VIII	2 4	1,9 1,5	1,9 1,5	14,9 9,0
IX	3	0,9	0,8	6,7
X	1 1 1 1 1	2,3 1,7 0,8 0,8 0,6	1,2 0,8 0,6 0,6 0,5	12,5 8,7 6,8 6,0 5,5

Proben Nummer	Mittelwert aus 3 Einzelm. ges. α-Akt. Imp./h	Elektrischer Nulleffekt Imp./h	Nulleffekt des Zns(Ag) ges. α-Akt. Imp./h	²¹⁰ Po-Gehalt/g Asche Zerf./h	²¹⁰ Po-Gehalt/g chem. Asche Zerf./h	Impulsrate des ²¹⁰ Po Imp./h	Impulsrate des ²²⁶ Ra u. ²²⁸ Th ges. α-Akt. Imp./h
1	92,4	4,0	3,5	51,2	36,6	63,0	21,5
2	33,0	4,0	3,5	3,1	2,2	5,9	21,6
3	50,6	4,0	11,5	6,5	4,7	11,3	23,9
4	8,2	0,5	1,3	3,5	2,5	1,8	4,7
5	42,0	4,0	11,5	7,1	5,1	18,9	15,6
6	38,3	4,0	11,5	6,3	4,5	10,5	12,0
7	25,0	0,5	4,4	8,6	6,1	5,7	14,3
8	39,6	4,0	11,5	7,6	5,4	11,4	12,6
9	33,0	4,0	11,5	5,1	3,6	8,2	9,4
10	40,7	4,0	11,5	4,7	3,4	7,7	17,6
11	34,6	0,5	4,4	5,8	4,1	3,6	26,1
12	23,3	0,5	4,4	13,8	9,9	8,2	10,2
13	9,9	0,5	1,3	12,4	8,9	5,8	2,3
14	42,8	4,0	11,5	10,1	7,2	15,9	11,1
15	74,5	4,0	11,5	6,0	4,3	9,8	49,2
16	13,3	0,5	4,4	2,3	1,6	1,4	7,0
17	36,3	4,0	11,5	3,6	2,6	6,1	14,9
18	47,4	4,0	11,5	8,8	6,3	15,2	16,8
19	34,4	4,0	3,5	5,3	3,8	7,4	19,6
20	68,0	4,0	11,5	13,9	9,9	21,0	31,5
21	44,0	4,0	11,5	15,3	10,9	25,7	12,8
22	33,0	4,0	11,5	1,5	1,0	2,3	15,2

Tabelle V Rechengang zur Bestimmung des ²¹⁰Po-, ²²⁶Ra- und ²²⁸Th-Gehaltes menschlicher Knochen.

Proben- nummer	Mischungs- verhältnis Kn : ZnS(Ag)	Chemische Knochenasche [g]	ZnS (Ag) [g]	Remission der Mischung [%]
1	1,8 : 0,9	9,4	4,7	93,7
2	1,8 : 0,9	9,4	4,7	94,0
3	1,0 : 1,7	5,2	8,8	93,3
4	1,8 : 0,9	3,6	1,8	94,2
5	1,0 : 1,7	5,2	8,8	92,0
6	1,0 : 1,7	5,2	8,8	93,1
7	1,0 : 1,7	2,0	3,4	93,5
8	1,0 : 1,7	5,2	8,8	91,7
9	1,0 : 1,7	5,2	8,8	92,6
10	1,0 : 1,7	5,2	8,8	92,9
11	1,0 : 1,7	2,0	3,4	92,8
12	1,0 : 1,7	2,0	3,4	91,9
13	1,8 : 0,9	3,6	1,8	93,5
14	1,0 : 1,7	5,2	8,8	92,4
15	1,0 : 1,7	5,2	8,8	92,7
16	1,0 : 1,7	2,0	3,4	92,5
17	1,0 : 1,7	5,2	8,8	93,2
18	1,0 : 1,7	5,2	8,8	93,3
19	1,8 : 0,9	9,4	4,7	95,1
20	1,8 : 1,7	5,2	8,8	91,8
21	1,0 : 1,7	5,2	8,8	93,1
22	1,0 : 1,7	5,2	8,8	92,5

Tabelle VI

Remissionswerte für die verschie-
denen Mischungsverhältnisse

Proben Nummer	Zählaubeute des ^{226}Ra ges. α -Akt. [%]		Zählaubeute des ^{210}Po ges. α -Akt. [%]		Zählaubeute des ^{228}Th ges. α -Akt. [%]		Zählaubeute des ^{228}Th Koinzidenzen [%]	
	I	II	I	II	I	II	I	II
1	25,0	21,3	21,6	18,4	21,5	18,3	5,4	4,3
2	25,0	21,3	22,2	18,9	23,0	19,5	5,6	4,5
3	61,0	51,8	54,0	46,0	67,0	57,0	29,0	23,2
4	25,5	21,8	22,6	19,2	24,5	20,8	6,0	4,8
5	54,0	46,0	49,0	41,6	51,5	43,8	16,0	12,8
6	59,5	50,6	53,0	45,0	63,0	53,5	23,0	18,4
7	62,5	53,1	55,0	46,8	70,0	59,5	33,0	26,4
8	52,5	44,6	47,5	40,4	49,0	41,6	15,3	12,2
9	57,5	48,8	51,0	43,4	58,5	49,8	19,0	15,2
10	61,0	51,8	52,0	44,2	57,5	49,0	21,0	16,8
11	58,0	49,3	52,0	44,2	60,5	51,4	26,0	16,0
12	53,5	45,3	48,5	41,2	51,0	43,3	16,0	12,8
13	23,5	20,0	21,0	17,8	22,0	18,7	5,0	4,0
14	55,5	47,2	50,0	42,5	55,5	47,2	18,0	14,4
15	57,5	49,0	51,5	43,7	59,5	50,5	28,0	16,0
16	56,5	48,0	51,0	43,3	57,5	48,9	18,5	14,8
17	60,0	51,0	53,5	45,5	65,5	55,7	27,0	21,6
18	61,0	51,8	54,0	46,0	67,0	57,0	29,0	23,2
19	28,5	24,2	24,6	20,9	28,0	23,8	7,5	6,0
20	53,0	45,0	48,0	40,8	49,5	42,1	15,5	12,4
21	60,0	51,0	53,0	45,0	64,0	54,4	24,5	19,6
22	56,5	48,0	50,5	43,0	57,3	48,6	18,5	14,6

I = Werte aus der Kurve entnommen II = Werte f. r. rade Rohangaben korrigiert

Tabelle VII Bestimmung der Zählaubeuten der einzelnen Proben

Proben- nummer	Gemessene Koinzidenzen Koinz./h	Mulleffekt des ZnS(Ag) Koinzidenzen Koinz./h	Zufällige Koinzidenzen Koinz./h	Koinzidenz- rate des 228Th Koinz./h	Zerfallsrate des 228Th + folgeprodukte Imp./h	Impulsrate des 228Th + folgeprodukte Imp./h	Impulsrate des 226Ra + folgeprodukte Imp./h
1	0,99	0,09	0,65	0,25	29,0	5,3	16,2
2	0,38	0,09	0,05	0,24	27,0	5,3	16,3
3	1,45	0,46	0,18	0,81	17,5	10,0	13,9
4	0,07	0,04	--	0,03	2,6	0,5	4,2
5	0,92	0,46	0,13	0,32	12,5	5,5	10,1
6	0,90	0,46	0,08	0,36	10,0	5,3	6,7
7	0,62	0,18	0,05	0,40	7,0	4,2	10,1
8	0,81	0,46	0,09	0,26	10,5	4,4	8,3
9	0,61	0,46	0,07	0,08	2,6	1,3	8,1
10	0,92	0,46	0,12	0,34	10,1	5,2	12,4
11	1,12	0,18	0,06	0,88	27,5	14,3	11,8
12	0,32	0,18	0,04	0,11	4,2	1,8	8,4
13	0,05	0,04	--	0,01	1,7	0,3	2,0
14	0,80	0,46	0,13	0,22	7,5	3,5	7,6
15	2,65	0,46	0,41	1,78	55,5	28,0	21,2
16	0,32	0,18	--	0,14	4,8	2,2	4,8
17	0,73	0,46	0,06	0,22	5,1	2,8	12,1
18	1,18	0,46	0,17	0,55	11,9	6,8	10,0
19	0,56	0,09	0,06	0,43	35,8	8,5	11,1
20	1,63	0,46	0,27	0,90	40,0	16,8	14,7
21	1,06	0,46	0,11	0,49	12,4	6,8	6,1
22	0,75	0,46	0,05	0,24	8,1	3,9	11,3

Tabelle VIII Rechengang zur Bestimmung des ^{226}Ra - und ^{228}Th -Gehaltes menschlicher Knochen

Literaturverzeichnis

- (1) GEORGE, A.V., A.O. GETTLER a. R.H. MULLER: Radioactive substances in a body five years after death. Arch. Path. 7 (1929) 397.
- (2) EVANS, R.D.: Radium poisoning a review of knowledge. Amer. J. of Public Health 23 (1933) 1017.
- (3) FLINN, F.B.: Stimulating action of radioactive deposits in the body. Radiology 23 (1934) 331.
- (4) JANITZKY, A., A. KREBS u. B. RAJEWSKY: Untersuchungen zum Problem der Radiumvergiftung. II. Experimentelle Bestimmung der Radiumablagerungen im menschlichen Körper. Strahlentherapie 61 (1938) 254.
- (5) MUTH, H.: Neue Probleme des allgemeinen Strahlenschutzes. Habilitationsschrift (1951)
- (6) FLINN, F.B., J. VICTOR, N. STILLMAN a. D. MAC DONALD: Action of radium on tissues cultures. Amer. Journ. of Cancer 27 (1934) 351.
- (7) FLINN, F.B.: Radium salts and emanation. Amer. Journ. Roentgenology 31 (1934) 830.
- (8) RAJEWSKY, B.: Untersuchungen zum Problem der Radiumvergiftung I. Toxische Mengen des in den menschlichen Körper eingeführten Radiums. Strahlentherapie 56 (1936) 703.
- (9) AUB, J.C., R.D. EVANS, D.M. GALLACHER a. D.M. TIBBETTS: Effects of treatment on radium and calcium metabolism in the human body. Ann. intern. Med. 11 (1938) 1443-1463
- (10) MARTLAND, H.S. a. R.E. HUMPHRIES: Osteogenic Sarcoma in dial painters using luminous paint. Arch. Path. 7 (1929) 406.
- (11) EVANS, R.D.: Protection of radium dial workers and radiologists from injury by radium. Journ. of Industrial Hygiene and Toxicology 25 (1943) 253.
- (12) HINDMARSH, W. a. J. VAUGHAN: The distribution of radium in certain bones from a man exposed to radium for thirty-four years. Brit. J. Radiol. Suppl. 7 (1957) 71.
- (13) RAJEWSKY, B.: Strahlendosis und Strahlenwirkung. Tafeln und Erläuterungen, Unterlagen zum Strahlenschutz. Zweite verbesserte und vermehrte Auflage. Georg Thieme - Verlag, Stuttgart 1956.
- (14) Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation: Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Pergamon Press (1959) 12.

- (15) KREBS, A.: Der Radiumgehalt menschlichen Gewebes in Abhängigkeit vom Alter. Ztschr.f.Alterforschung Bd.IV (1942) 53.
- (16) KREBS, A.: Untersuchungen zum Problem der Radiumvergiftung. IV. Der Gesamtradiumgehalt des menschlichen Organismus. Strahlentherapie 72 (1942) 164.
- (17) MUTH, H., A.SCHRAUB u. K.AURAND: New comparative data on the normal radium content of the human body. Pogr.in Radiobiology, Edinburgh (1956) 525.
- (18) MUTH, H., A.SCHRAUB, K.AURAND u. H.J.HANTKE: Measurements of normal radium burdens. Brit.J.Radiol. 7 (1957) 54.
- (19) RAJEWSKY, B., H.MUTH, H.J.HANTKE u. K.AURAND: Weitere Ergebnisse zur Frage des natürlichen Radiumgehalts des menschlichen Körpers sowie von Nahrung und Trinkwasser. Strahlentherap. 104 (1957) 157.
- (20) RAJEWSKY, B., H.J.HANTKE u. H.MUTH: Altersabhängigkeit des natürlichen Radiumgehalts. Zschrft. für Naturforschung 13b (1958) 474.
- (21) HANTKE, H.J.: Die Altersabhängigkeit des natürlichen Radium-226-Gehaltes. Dissertation. Frankfurt/Main (1959)
- (22) MUTH, H., B.RAJEWSKY, H.J.HANTKE u. K.AURAND: The normal radium content and the Ra-226/Ca - ratio of various foods, drinking water and different organs and tissues of the human body. Health Physics 2 (1960) 239.
- (23) TURNER, R.C.: The ingestion of radium-226 in food and water in Great Britain. Brit.J.of Cancer vol.XVI (1962) 200
- (24) HURSH, J.B.: Natural occurrence of radium in man and in waters and in foods. Brit.Journ.Rad. 7 (1957) 45.
- (25) STEHNEY, A.F. a. H.F.LUCAS: Studies on the Radium content of humans arising from the natural Radium of their environment. Vortrag Nr.A/Conf.8/P/852 auf der 1.Internat. Konferenz über die friedliche Anwendung der Atomenergie, Genf, August 1955.
- (26) BURKSER, E., H.SCHAPIRO u. K.BRONSTEIN: Radiumgehalt einiger Nahrungsmittel. Biochem.Zschrft. 211 (1929) 323.
- (27) ENGELMANN, E.: Estimate of the dietary intake of Radium-226 for New York City infants. Health and Safety Laboratory (HASL-113), Fallout Program Quarterly Summary Report, July 1, (1961) 95. United States Atomic Energy Commission, New York Operations Office.
- (28) LUCAS, H.F.: Correlation of the natural radioactivity of human body to that of its environment: Uptake and retention of Ra-226 from food and water. ANL-6297 (1961) 55-60.

- (29) PALMER, R.F. a. F.B. QUEEN: Normal abundance of Radium in cadavers from the Pacific Northwest, Amer.J.Roentgenol. 79 (1958) 521.
- (30) WALTON, A., R.KOLOGRIMOV a. J.L.KULP: The concentration and distribution of Radium in the normal human skeleton. Health Phys. 1 (1959) 409.
- (31) MAYNEORD, W.V.: Some problems in the metabolism of radioactive materials in the human body. Clinical Radiology 11 (1960) 2.
- (32) MAYNEORD, W.V., J.M.RADLEY u. R.C.TURNER: Die Alpha-Strahlung des menschlichen Körpers und seiner Umgebung. Strahlentherapie 110 (1959) 431.
- (33) MICHELSON, I.: Radium-226 in total diet. Health Physics 5 (1961) 229.
- (34) MUTH, H.: Die natürliche und künstliche Strahlenbelastung des Menschen und die höchstzulässigen Dosiswerte. Umschau 24 (1957) 754.
- (35) MUTH, H.: Vergleich der Strahlendosis durch Sr-90 im Knochen mit der natürlichen Strahleneinwirkung. Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft 18 (1961) 240.
- (36) LANGHAM, W. a. E.C.ANDERSON: Biospheric contamination from nuclear weapons tests through 1958. Report, Los Alamos Scientific Laboratory, Univ.of Calif., Los Alamos, New Mexico 1959.
- (37) TURNER, R.C., J.M.RADLEY a. W.V.MAYNEORD: Alpha ray activities of humans and their environment. Nature 181 (1958) 518.
- (38) MUTH, H. u. E.OBERHAUSEN: Die gesamte natürliche Alpha-Strahlen-Aktivität des Menschen. Paper presented at the Ninth International Congress for Radiology in Munich. July 1959.
- (39) HILL, C.R. u. Z.S.JAWOROWSKY: Nature 190 (1961) 353.
- (40) BLACK, S.C.: Low-Level polonium and radiolead analysis. Health Physics 7 (1961) 87.
- (41) HOLTZMAN, R.B.: Some determinations of the RaD and RaF concentrations in human bone. ANL-6199 (1960) 94; Radiological Physics Division Semiannual Report, January through June (1960) (ROSE, J.E., MARINELLI, L.D., ed.)
- (42) HURSH, J.B. a. A.GATES: Body radium content of individuals with no known occupational exposure. Nucl. 7 (1950) 46.
- (43) MARTIN, E.J. a. J.K.W.FERGUSON: Radon in normal breath. Canad.J.Med.Science 30 (1952) 42.

- (44) MUTH, H., A. SCHRAUB u. K. AURAND: Zum normalen Radiumgehalt des menschlichen Körpers. Strahlenforschung und Strahlenbehandlung. Sonderband der Strahlentherapie Bd. 35 (1955) 227.
- (45) GROOS, E.: Radiochemische Bestimmung von Strontium-Isotopen. Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft 18 (1961) 25.
- (46) STÄHLBOFEN, W.: Zur Frage der Verteilung von Sr-90 im Tierkörper. Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft 18 (1961) 201.
- (47) HURSH, J. B., A. LOVAAS a. E. BILTZ: Radium in bone and soft tissues of man. UR-581 (1960) 11.
- (48) HURSH, J. B. a. A. LOVAAS: Radium-226 in bone and soft tissues of man. Nature 198 (1963) 265.
- (49) WEISHAAR, J.: Zur Frage der somatischen Wirkung kleinster Strahlendosen auf den Föten. Zschr. f. ärztl. Fortbildung 50 (1961) 763.
- (50) STEARNS, G.: The mineral metabolism of normal infants. Physiological Reviews 19 (1939) 415.
- (51) SWANSON, W. W. a. V. IOB: The growth of fetus and infant as related to mineral intake during pregnancy. Amer. J. of Obstetrics and Gynecology 38 (1939) 382.
- (52) In: "Documenta Geigy, wissenschaftliche Tabellen", 6. Aufl. (1960) 486.
- (53) PRIBILLA, O., D. MERTEN u. U. MUTSCHKE: Zur Kontamination der menschlichen Plazenta durch Strontium-90. Naturwissenschaften 49 (1962) 18.
- (54) KRIEGEL, H.: Das biologische Verhalten radioaktiver Spaltprodukte bei trächtigen Säugetieren. Verh. d. Dtsch. Zool. (1960) 238.
- (55) MAC DONALD, N. S., D. L. HUTCHINSON a. N. HEPLER: The bidirectional transport of radiostrontium across the primate placenta. Radiat. Res. 17 (1962) 752.
- (56) JAKI, S. L. u. V. F. HESS: J. Geophys. Res. 63 (1958) 373.
- (57) AURAND, K., U. FEINE, W. JACOBI u. A. SCHRAUB: Untersuchungen zur Frage der Strahlenbelastung der Lunge bei Aufenthalt in radonhaltiger Atmosphäre. Strahlentherapie 104 (1957) 345.
- (58) JACOBI, W.: Die natürliche Radioaktivität der Atmosphäre und ihre Bedeutung für die Strahlenbelastung des Menschen. Habilitationsschrift (1962).
- (59) HILL, C. R.: Lead-210 and polonium-210 in grass. Nature 187 (1960) 211.

- (60) HERBST, W., H. LANGENDORFF, K. PHILIPP u. K. SOMMERMEYER: Untersuchungen über die Radioaktivität der Vegetation. Atomkernenergie 2 (1957) 357.
- (61) MAYNEORD, W.V., R.C. TURNER a. J.M. RADLEY: Alpha activity of certain botanical materials. Nature 187 (1960) 208.
- (62) MAYNEORD, W.V. a. C.R. HILL: Spectroscopic identification of alpha-emitting nuclides in biological material. Nature 184 (1959) 667.
- (63) MARSDEN, E.: Radioactivity of soils, plants and bones. Nature 187 (1960) 192.
- (64) HURSH, J.B.: Natural lead-210 content of man. Science 132 (1960) 1666.
- (65) HOLTZMAN, R.B.: Measurement of the natural contents of RaD (Pb-210) and RaF (Po-210) in human bone-estimates of whole-body burdens. Health Physics 9 (1963) 385.
- (66) GROOS, E., E.L. SÄTTLER u. W. STAHLHOFEN: Der natürliche RaD- und RaF-Gehalt im Knochen des Menschen. Atomkernenergie 8 (1963) 32.
- (67) HOFFER, M.: Verdampfungsversuche im Vakuum an Polonium, Radium D und Radium E. Aus den Sitzungsberichten der Akademie der Wissenschaften in Wien. Mathem.-naturw. Klasse Abteilung IIa 144 (1935) 393.
- (68) In: "Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie". Polonium und Isotope. System-Nummer 12.
- (69) MONTEL, E.: J. Phys. Rad. 10 (1929) 79
- (70) FETT, W.: Rückstoßstrahlen im Proportionalzählrohr. Atomkernenergie 8 (1963) 25.
- (71) BLACK, S.C.: Low level polonium determination of tissue and urine. University of Rochester Report, UR-463 (1956).
- (72) HILL, C.R.: Identification of α -emitters in normal biological materials. Health Physics 9 (1962) 17.
- (73) HOLTZMAN, R.B.: Critique on the half-lives of lead and RaD in the human body. ANL-6297 (1960); Radiological Physics Division Semiannual Report, July through December (1960) 67.
- (74) TURNER, R.C., J.M. RADLEY a. W.V. MAYNEORD: The alpha-ray activity of human tissues. Brit. J. Radiol. 31 (1958) 397.
- (75) MEYER, S. u. E. SCHWEIDLER: In: "Radioaktivität" (1927) 107, Teubner Verlag, Leipzig.
- (76) GLASSON, J.L.: Stopping power and atomic number. Phil. Mag., xliii (1922) 477.

- (77) MUTH, H. u. E. OBERHAUSEN: Die gesamte natürliche Alphastrahlenaktivität des Menschen. In: "IXth International Congress of Radiology", Abhandlungen. Hrsgg. von B. Rajewsky. Verlag Georg Thieme, Stuttgart, und Urban u. Schwarzenberg, München-Berlin, Bd. II (1961) 1140.
- (78) ROEHOLT Jr., J.N.: Quantitative radiochemical for determination of the sources of natural radioactivity. Analytical Chemistry 29 (1957) 1398.
- (79) Gebrauchsanweisung, Lichtelektrisches Remissionsphotometer Elrepho, Carl Zeiss, Oberkochen/Württemberg.
- (80) Halbleiter und Phosphore, Vorträge des Internationalen Kolloquiums 1956 "Halbleiter und Phosphore" in Garmisch-Partenkirchen. Friedr. Vieweg u. Sohn, Braunschweig, Akademie-Verlag, Berlin, 1958.
- (81) KORTUM, G.: In: "Kolorimetrie, Photometrie und Spektrometrie" Bd. II, Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1955.
- (82) In: "Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie", 8. Auflage: Radium und Isotope. System-Nummer 31, Verlag Chemie GmbH Berlin, 1928.
- (83) In: "Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie", 8. Auflage: Thorium und Isotope. System-Nummer 44, Verlag Chemie GmbH Weinheim/Bergstraße.
- (84) RAJEWSKY, B. u. W. STAHLHOFEN: Zur Bestimmung der natürlich vorkommenden alphastrahlenden Nuklide im menschlichen Knochen. Naturwissenschaften 49 (1962) 607.
- (85) RAJEWSKY, B. a. W. STAHLHOFEN: Naturally occurring alpha-emitting nuclides in the human body. Nature 198 (1963) 960.
- (86) LUCAS, H.F., D.E. WALLACE, A.F. STEHNEY a. F.H. ILCEWICZ: Correlation of the Ra-228 and Ra-226 content of man with that of the food and water of his environment. In: "Second International Congress of Radiation Research", Abstracts of Papers. Harrogate, Yorkshire, England, August 1962.
- (87) STEHNEY, A.F., R.S. CALDECOTT a. A.L. SNYDER: Radioisotopes in the skeleton: Naturally occurring radioisotopes in man. Radioisotopes in the Biosphere Minneapolis, (1960) 366.
- (88) KAUL, A.: Dissertation in Vorbereitung.
- (89) STAHLHOFEN, W. u. A. KAUL: Measurements of Ra-226, Th-232 and daughter products in biological samples. (Vortrag) International Atomic Energy Agency, Wien 1963.
- (90) SPIERS, F.W. a. P.R.J. BURCH: Measurements of body radioactivity in a radium worker. Brit. J. Radiol. 7 (1957) 81.

- (91) MUTH, H.: Die Mikroverteilung des Radiums im Knochen und ihre Bedeutung für die Strahlenbelastung. Strahlenschutz Heft 12, Sonderausschuß Radioaktivität, Kolloquium über radioaktive Partikel, Gersbach und Sohn Verlag GmbH, Braunschweig (1959) 173.
- (92) ENGFIELD, B., A. ENGSTROM u. R. ZETTERSTROM: Renewal of phosphate in bone minerals. Radioautographic studies of the renewal of phosphate in different structures of bone. Biochim. Biophys. Acta 8 (1925) 375.
- (93) ENGSTROM, A., R. BJÖRNERSTEDT, C. J. CLEGGEDSON u. A. NELSON: Bone and Radiostrontium. Almquist u. Wiksell, Stockholm, John Wiley u. Sons, Inc./New York, S. 88.
- (94) VAN DILLA, U. A., B. J. STOVER a. J. S. ARNOLD: On the retention and translocation of Ra-224 (ThX) in dogs. Amer. Journ. Roentg. 77 (1953) 503.
- (95) JOOS, SCHOPPER: Grundriß der Photographie und ihrer Anwendungen besonders in der Atomphysik. Akad. Verlagsgesellschaft m. b. H., Frankfurt/Main, 1958.
- (96) ROWLAND, R. E. a. J. H. MARSHALL: Radium in human bone: The dose in microscopic volumes of bone. Radiation Research 11 (1959) 299.
- (97) SPIERS, F. W.: α -ray dosage in bone containing radium. Brit. Journ. Rad. 26 (1953) 296.
- (98) LEA, D. E.: Actions of Radiations on Living Cells, Cambridge, University Press, 1959.
- (99) Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Supplement No. 16 (A/5216) New York 1962.
- (100) HINE, G. J. a. G. L. BROWNELL: Radiation Dosimetry. Academic Press Inc., Publishers, New York, 1956.
- (101) MAYS, C. W., R. HALDIN u. M. A. VAN DILLA: Thoron exhalation in radiothorium-burdened beagles. Rad. Res. 9 (1958) 438.
- (102) SPIERS, F. W.: The influence of energy absorption and electron range on dosage in irradiated bone. Brit. J. Radiol. 12 (1949) 521.
- (103) SPIERS, F. W. a. P. R. J. BURCH: Radioactivity of the human body. Advances in biological and medical physics. V. Academic Press Inc. New York (1957).
- (104) CHARLTON, D. E. a. D. V. CORMACK: A method for calculating the Alpha-ray dosage to soft tissue-filled cavities in bone. Brit. J. Radiol. 35 (1962) 473.

- (105) KONCENKO, A.M.: Calculation of the intensity of the alpha-radiation dose arising from a radioactive substance distributed inside the organism. Biophysics 2 (1957) 98.
- (106) SPIERS, F.W.: Gamma-ray dose-rates to human tissues from external sources in Great Britain. pp. 66-70, Appendix D in The Hazards to Man of Nuclear and Allied Radiations. Second Report of the Medical Research Council, HMSO, Cmd. 1225 (1960); v.e. United Nations document a/ac.82/G/L555.
- (107) SCHRAUB, A., K. AURAND u. W. JACOBI: The importance of radon and its decay products in relation to the normal radiation dose in humans. Brit.J.Radiol. 7 (1957) 114.
- (108) MARQUARDT, H.: Die Wirkung ionisierender Strahlen auf die Erbkonstruktion. Umschau 57 (1957) 109 und 170.
- (109) HINDMARSH, M.O., J. VAUGHAN, L.F. LAMERTON a. F.W. SPIERS: Relative hazards of strontium-90 and radium-226. Brit.J.Radiol. 31 (1958) 518.
- (110) SPIERS, F.W.: Dosage in irradiated soft tissues and bone. Brit.J.Radiol. 24 (1951) 365.
- (111) CHARLTON, D.E. a. D.V. CORMACK: Energy dissipation in finite cavities. Rad. Research 17 (1962) 34.
- (112) Report of the International Commission on Radiological Units and Measurements (ICRU), Handbook 78 (1959)
- (113) COFIELD, R.E.: Radioactivity of thorium and feasibility of in vivo thorium measurements. Report Number Y-1280, Subject Category: Health a. Safety TID-4500. Contract No. W-7405-eng-26 with the U.S. Atomic Energy Commission, Oak Ridge, Tennessee (1959)
- (114) JAEGER, R.G.: Dosimetrie und Strahlenschutz. Georg Thieme Verlag, Stuttgart (1959).
- (115) GUSSEW, N.G.: In "Leitfaden für Radioaktivität und Strahlenschutz". VEB Verlag Technik Berlin (1957).
- (116) Reactor Shielding Design Manual. Editor T. Rockwell III, United States Atomic Energy Commission, McGraw-Hill Book Company, Inc. (1956).
- (117) Radiation quantities and Units. International Commission on Radiological Units and Measurements (ICRU), Report 10a, (1962) Handbook 84, United States Department of Commerce, National Bureau of Standards.
- (118) Report of the RBE Committee to the International Commission on Radiological Protection and on Radiological Units and Measurements. Health Physics Pergamon Press 9 (1963) 357.
- (119) ISRAEL, H. u. A. KREBS: "Kernstrahlung in der Geophysik". Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1962.

- (120) FRANKE, T.: Persönliche Mitteilung
- (121) OSBORNE, R.V.: Plutonium-239 and other nuclides in ground-level air and human lungs during spring 1962. Nature (1963) 143.
- (122) SACKETT, W.M.: Protactinium-231 content of ocean water and sediments. Science 132 (1960) 1761.

Meinem hochverehrten Lehrer, Herrn Professor Dr. B. Rajewsky, danke ich herzlich für die Anregung zu dieser Arbeit sowie die jederzeit gewährte Unterstützung und wohlwollende Förderung bei ihrer Durchführung.

Den Herren Professor Dr. H. Muth, Homburg/Saar, und Professor Dr. A. Schraub, Gießen, danke ich für ihr förderndes Interesse, mit dem sie den Fortgang der Arbeit verfolgten.

Mein Dank gilt außerdem allen Kolleginnen und Kollegen aus dem Max-Planck-Institut für Biophysik, die mir mit ihrem Rat und ihrer Erfahrung halfen. In besonderem Maße trifft dies zu auf Herrn Dr. H. Kühn, der mir in vielen Stunden fruchtbarer Diskussion wertvolle Ratschläge und Hinweise gab, die Herren Professor Dr. V. Belloch-Zimmermann und Dr. E. Löhr, die die Sektion des Pötenmaterials besorgten, Herrn Ingenieur G. Heigwer, der mich bei allen technischen Problemen tatkräftig beriet, sowie die technischen Assistentinnen Frau E. Grün und Fräulein U. Tecke, die mir durch ihre gewissenhafte Mitarbeit bei der Durchführung und Auswertung der Versuche wertvolle Hilfe leisteten.

Lebenslauf

Am 14.6.1929 wurde ich als Sohn des Lokomotivführers Bernhard Stahlhofen und dessen Ehefrau Agnes geb. Grätz in Obereschbach bei Bad Homburg geboren. Nach dem Besuch der Volksschule in Obereschbach von Ostern 1935 bis Ostern 1943 trat ich am 15.4.1943 in der Firma PIV, Werkstätten für Getriebebau, in Bad Homburg im Taunus meine Lehre als Maschinenschlosser an. Da diese Firma nach Kriegsende die Arbeit vorübergehend einstellen mußte, wechselte ich am 1.7.1945 zur Firma Karl Schmidt, Schlosserei und Maschinenbau, in Bad Homburg über und legte dort am 14.10.1946 meine Gesellenprüfung als Maschinenschlosser ab.

Nach einjähriger Tätigkeit als Maschinenschlosser nahm ich an einem Abiturientenkursus im Goethe-Realgymnasium in Frankfurt am Main teil und unterzog mich dort am 23.3.1950 der Reifeprüfung. In der Zeit vom 1.4.1950 bis 1.10.1950 war ich als Praktikant bei der Firma PIV in Bad Homburg beschäftigt.

Am 13.10.1950 immatrikulierte ich mich als Student der Physik an der Johann-Wolfgang-Goethe-Universität in Frankfurt am Main. An dieser Universität legte ich am 12.5.1953 die Vordiplomprüfung für Physiker ab. Nach zwei weiteren Studienjahren trat ich 1955 in das Max-Planck-Institut für Biophysik in Frankfurt am Main ein und arbeitete dort unter der Leitung von Herrn Professor Dr. B. Rajewsky an einer Diplomarbeit mit dem Thema "Die Absolutmessung radioaktiver Isotope". Die Diplomprüfung für Physiker bestand ich am 16.5.1958.

Nach der Diplomprüfung verblieb ich weiter am Max-Planck-Institut für Biophysik und beschäftigte mich ab Oktober 1958 unter Leitung von Herrn Professor Dr. B. Rajewsky mit Problemen der Messung des natürlich radioaktiven Gehaltes des menschlichen Körpers. Diese Arbeit führte zu der vorliegenden Dissertation. Seit 1.4.1960 bin ich als wissenschaftlicher Mitarbeiter des Max-Planck-Institutes für Biophysik tätig.

